



Caractérisation d'une pollution de sols granulaires par des hydrocarbures issus de la pyrolyse de la houille

Jean-Pierre Faccendini

► To cite this version:

Jean-Pierre Faccendini. Caractérisation d'une pollution de sols granulaires par des hydrocarbures issus de la pyrolyse de la houille. Géophysique [physics.geo-ph]. Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, 1995. Français. NNT : . tel-00529342

HAL Id: tel-00529342

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00529342>

Submitted on 25 Oct 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ECOLE NATIONALE DES PONTS ET CHAUSSEES

X

**CARACTERISATION D'UNE POLLUTION
DE SOLS GRANULAIRES
PAR DES
HYDROCARBURES ISSUS DE LA
PYROLYSE DE LA HOUILLE**

THESE
présentée par

Jean-Pierre FACCENDINI

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

de L'ECOLE NATIONALE DES PONTS ET CHAUSSEES

en

GEOLOGIE DE L'INGENIEUR

Soutenue le 19 décembre 1995 devant le jury composé de :

MM.	M.	ARNOULD	Examineur, Président du jury.
	M.	CHENEVOY	Rapporteur.
	J.	ESTEOULE	Rapporteur.
	R.	STRUILLOU	Examineur, Directeur de thèse.
	P.	VERCAMER	Examineur.

SOMMAIRE

CHAPITRE I : CONTEXTE : NATURE DES PROBLEMES POSES PAR LA VALORISATION DES ANCIENS SITES INDUSTRIELS D'USINES A GAZ.....	5
I.1. ASPECTS LEGISLATIFS ET REGLEMENTAIRES.....	5
<i>I.1.1. Définition d'un site pollué.....</i>	<i>5</i>
<i>I.1.2. Nombre de sites d'usines à gaz concernés en France.....</i>	<i>5</i>
<i>I.1.3. Evolution de la problématique des sols pollués.....</i>	<i>6</i>
I.1.3.1. Apparition aux USA.....	6
I.1.3.2. Application à l'Europe.....	6
I.1.3.3. La situation française.....	6
<i>I.1.4. Politique du Ministère de l'Environnement.....</i>	<i>8</i>
<i>I.1.5. Du problème... à sa résolution.....</i>	<i>8</i>
I.2. ORIGINE DU PROBLEME : LA FABRICATION DU GAZ DE VILLE, FONCTIONNEMENT D'UNE USINE A GAZ.....	10
<i>I.2.1. Les sous produits de fabrication du gaz.....</i>	<i>12</i>
I.2.1.1. Localisation des sous-produits de fabrication du gaz.....	13
I.2.1.2. Utilisation des sous produits de fabrication du gaz.....	13
<i>I.2.2. Caractéristiques des polluants.....</i>	<i>14</i>
I.2.2.1. L'état physique.....	14
I.2.2.2. L'état chimique.....	14
I.2.2.2.1. La solubilité dans l'eau.....	14
I.2.2.2.2. La volatilité.....	15
I.2.2.2.3. La densité.....	15
I.2.2.2.4. L'explosivité.....	15
I.3. NATURE DES SOUS PRODUITS D'ANCIENNES USINES A GAZ, COMPOSITION ET LOCALISATION. .	16
<i>I.3.1. Les goudrons.....</i>	<i>16</i>
<i>I.3.2. Les eaux ammoniacales.....</i>	<i>16</i>
<i>I.3.3. Les matières épurantes.....</i>	<i>16</i>
<i>I.3.4. Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (H.A.P).....</i>	<i>17</i>
I.3.4.1. Formulation chimique.....	20
I.3.4.2. Valeurs de référence pour les concentrations.....	20
I.3.4.3. Propriétés physico chimiques des HAP.....	20
I.3.4.4. Devenir des HAP.....	22
I.3.4.5. Toxicité de certains composés aromatiques rencontrés.....	22
<i>I.3.5. Les traitements applicables aux anciens sites usines à gaz.....</i>	<i>25</i>
I.3.5.1. Le traitement thermique.....	25
I.3.5.2. Le pompage.....	25
I.3.5.3. Le lavage.....	25
I.3.5.4. Venting.....	25
I.3.5.5. Stripping.....	25
I.3.5.6. Le traitement biologique.....	25
I.3.5.7. Le confinement et la stabilisation.....	26

I.4. MECANISMES GENERAUX DE LA MIGRATION DES HYDROCARBURES DANS LES SOLS.....	27
I.4.1. <i>Aspects qualitatif, création et nature de la source de contamination.</i>	28
I.4.1.1. Migration verticale seule, ou les hydrocarbures n'atteignent pas la nappe. Formation du corps d'impregnation.....	28
I.4.1.2. Migration verticale jusqu'à la frange capillaire.....	28
I.4.2. <i>Transfert des hydrocarbures mis en solution dans l'eau souterraine.</i>	29
I.4.3. <i>Les panaches d'hydrocarbures</i>	30
I.5. ETUDES SPECIFIQUES AUX GOUDRONS DE HOUILLE.....	30
I.5.1. <i>Configurations d'infiltration des goudrons.</i>	31
I.5.1.1. Sol perméable - quantité de goudron faible - milieu non saturé.....	31
I.5.1.2. Sol perméable - quantité de goudron importante - milieu non saturé :.....	32
I.5.1.3. Sol perméable - quantité de goudron importante - substrat imperméable.....	32
I.5.1.4. Sol perméable - quantité de goudron importante - nappe phréatique :.....	32
I.5.1.5. Effets de la complexité géologique.....	33

CHAPITRE II : IDENTIFICATION DES TERRES POLLUEES PAR DES HYDROCARBURES ISSUS DE LA PYROLYSE DE LA HOUILLE..... 35

II 1. GRANULOMETRIE ET SECHAGE DES SOLS POLLUES PAR DES GOUDRONS DE HOUILLE.....	35
II.1.1. <i>Préparation des échantillons de terre.</i>	35
II.1.2. <i>Essais granulométriques d'identification.</i>	35
II.1.3. <i>Détermination des températures de séchage des sols pollués par des goudrons</i>	37
II.1.3.1. Dispositif expérimental.....	37
II.1.4. <i>Résultats obtenus.</i>	38
II.1.5. <i>Interprétation des courbes de séchage.</i>	38
II.1.6. <i>Conclusion.</i>	39
II.2 CARACTERISATION QUANTITATIVE DE LA POLLUTION HYDROCARBONEE TOTALE D'UN SOL POLLUE PAR DES GOUDRONS DE HOUILLE.....	40
II.2.1. <i>Introduction.</i>	40
II.2.2. <i>Observations à la loupe binoculaire de l'échantillon S.</i>	40
II.2.3. <i>Identification de la phase minérale des échantillons par rayons X.</i>	44
II.2.4. <i>Résultats obtenus par diffraction RX.</i>	44
II.2.5. <i>Mesure de la teneur en carbonate par calcimétrie.</i>	45
II.2.6. <i>Interprétation.</i>	45
II.2.7. <i>Utilisation des pertes au feu pour quantifier la pollution.</i>	45
II.2.7.1. Détermination des conditions optimales de traitement thermique.....	45
II.2.7.2. Mode opératoire d'expérimentation utilisé et préconisé pour la calcination.....	46
II.2.7.3. Analyse de la pollution hydrocarbonée sur la base des pertes au feu obtenues à différentes températures.....	46
II.2.8. <i>Observations à la binoculaire des matériaux calcinés à différentes températures.</i>	47
II.2.9. <i>Conclusion.</i>	48
II.3. REPARTITION DE LA POLLUTION ENTRE LES DIFFERENTES FRACTIONS GRANULOMETRIQUES..	49
II.3.1. <i>Introduction.</i>	49
II.3.2. <i>Définition d'un taux d'agglomération basé sur les effets granulométriques du traitement à 500°C.</i>	50
II.3.3. <i>Etude expérimentale de la pollution des différentes fractions granulométriques de divers sols pollués.</i>	51
II.3.3.1. Etude granulométrique des sols pollués.....	51
II.3.3.2. Pertes au feu des diverses fractions granulométriques après 18 heures à 300°C et à 500°C.....	51

<i>II.3.4. Interprétation des résultats des calcinations effectuées à 300°C et 500°C pendant 18 heures, en vue de l'étude de la répartition de la pollution entre les différentes fractions granulométriques.</i>	55
II.3.4.1. Répartition de la pollution entre les fractions granulométriques.	56
II.3.4.2. Modification des courbes granulométriques après traitement à 300°C et 500°C et calcul des taux d'agglomération.	57
<i>II.3.5. Interprétation des résultats d'agglomération.</i>	58
<i>II.3.6. CONCLUSION</i>	61

CHAPITRE III : CARACTERISATION DU COMPORTEMENT MECANIQUE ET DE LA PERMEABILITE A L'EAU DE SOLS CONTAMINES PAR LES PRODUITS ISSUS DE LA PYROLYSE DE LA HOUILLE 63

III.1. ESSAIS DE PERMEABILITE EN CELLULE DE PERCOLATION A CONTRE PRESSION LATERALE.	63
<i>III.1.1. Principe de l'essai.</i>	63
<i>III.1.2. Description de l'appareillage utilisé</i>	64
<i>III.1.3. Préparation des échantillons et procédures opératoires des essais en cellule de percolation à contre pression latérale.</i>	64
<i>III.1.4. Procédures d'essai.</i>	65
III.1.4.1. Mise en place par vibro-compactage.	65
III.1.4.2. Mise en place par compactage dynamique et statique.	65
III.1.4.2.1. Principe de l'essai Proctor Normal.	65
III.1.4.2.2. Descriptif de l'appareillage utilisé.	66
III.1.4.2.3. Mode de calcul	66
III.1.4.2.4. Résultats de l'essai Proctor	66
<i>III.1.5. Conclusion</i>	68
III.1.5.1. Caractéristiques générales des échantillons soumis aux essais de perméabilité en cellule de percolation avec contre pression latérale.	69
<i>III.1.6. Résultats des essais de percolation réalisés en cellule avec contre pression latérale.</i>	70
III.1.6.1. Essais de perméabilité réalisés sur sols vibro-compactés pendant 10 minutes, puis compactés sous presse statique à 1MPa.	70
III.1.6.1.1. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué (5-10mm). Echantillon n°1	70
III.1.6.1.2. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 10mm. Echantillon n°2	70
III.1.6.1.3. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm. Echantillon n°3	70
III.1.6.2. Essais de perméabilité réalisés sur sols uniquement vibro-compactés.	71
III.1.6.2.1. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm. Echantillon n°4	71
III.1.6.2.2. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm. Echantillon n°5	71
III.1.6.2.3. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm. Echantillon n°6	71
III.1.6.2.4. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm VC5. Echantillon n°7	72
III.1.6.2.5. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 20mm VC5. Echantillon n°8	72
III.1.6.2.6. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 20mm VC5. Echantillon n°9	72
III.1.6.2.7. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 20mm VC5. Echantillon n°10	72

III.1.6.2.8. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 20mm par simple remplissage. Echantillon n°11	73
<i>III.1.7. Essai de perméabilité sur trois échantillons compactés à l'énergie Proctor.</i>	78
III.1.7.1. Analyse et commentaire des résultats obtenus	78
III.1.7.1.1. Echantillon n°12 (2-5 mm ; w=14%)	78
III.1.7.1.2. Echantillon n°13 (<2mm ; w _{opt})	78
III.1.7.1.3. Echantillon n°14 (<2mm ; w=18.9%)	78
III.1.7.1.4. Echantillon n°21 (<10mm; w=13,21%)	80
III.1.7.2. Conclusion	80
III.2. ESSAIS DE PERMEABILITE SUR COLONNE, SANS CONTRE PRESSION LATERALE	82
III.2.1. Principe de l'essai	82
III.2.2. Dispositif expérimental.	82
III.2.3. Mode de remplissage des échantillons de sol	82
III.2.3.1. Pré-traitement des terres contaminées	84
III.2.3.1.1. Pré-traitement par surfactant de l'échantillon de terre contaminé	84
III.2.3.1.2. Prétraitement de l'échantillon de terre avec le réactif de FENTON.	85
III.2.4. Résultats des essais de percolation réalisés en colonnes.....	86
III.2.4.1. Essai de perméabilité sur sable non pollué <2mm	86
III.2.4.2. Essai de percolation sur du sable pollué <2mm	86
III.2.5. Conclusion / discussion série d'essais n°1.	87
III.2.5.1. Essai de perméabilité sur une terre S3 polluée non traitée fraction <10mm.	90
III.2.5.2. Essais de perméabilité sur terres S3 polluées et préalablement traitées avec le Triton X-102 et par le réactif de Fenton.	90
III.2.5.3. Echantillon pré-traité au surfactant	91
III.2.5.4. Echantillon pré-traité au réactif de Fenton	91
III.2.5.5. Essai granulométrique après percolation sur colonne	91
III.2.6. Conclusion / discussion série d'essais n°2	92
III.3. INTERPRETATION DE LA TOTALITE DES RESULTATS DES ESSAIS DE PERMEABILITE-DISCUSSION.	94
III.3.1. Evolution globale des perméabilités.....	94
III.3.2. Influence des conditions expérimentales sur la mesure de la perméabilité.....	94
III.3.2.1. gradient hydraulique	94
III.3.2.2. Influence de la teneur en eau de compactage sur la perméabilité.....	94
III.3.2.3. Influence de la taille des agrégats et du mode de mise en place sur la valeur de la perméabilité.	95
III.3.2.3.1. Cellule de percolation à contre pression latérale : influence de l'effort de compactage et du mode de compactage sur la perméabilité.	95
III.3.2.3.2. Colonne de percolation : influence du mode de mise en place et du traitement des échantillons.	96
III.3.2.4. Influence du goudron sur la valeur de la perméabilité.....	97
CHAPITRE IV : ANALYSE CHIMIQUE DES COMPOSES DU SOL S3 ET DES PRODUITS DE PERCOLATION DES TESTS DE PERMEABILITE.	99
IV.1. PROBLEMATIQUE.	99
IV.2. OBJECTIFS DES ANALYSES CHIMIQUE REALISEES.	99
IV.3. ANALYSE DU SOL S3.	100
IV.3.1. Principe et méthode.....	100
IV.3.2. Application à la terre contaminée S3.....	100
IV.3.3. Préparation de l'échantillon.....	101

<i>IV.3.4. Résultats d'analyse du sol S3</i>	102
IV.3.4.1. Résultats obtenus directement après analyse par CLHP	102
IV.3.4.2. Résultats d'analyse sur un goudron "pur" issu du site	102
IV.3.4.3. Valeurs théorique après pondération par la courbe granulométrique. Reconstitution du sol S3	102
IV.3.4.4. Quantification des HAP. Résultats théoriques recalculés après pondération par la courbe granulométrique.....	104
<i>IV.3.5. Comparaison de la répartition des 16 HAP en fonction des classes granulométriques.....</i>	104
IV.3.5.1. Comparaison de la distribution théorique des HAP par nombre de cycles	106
IV.3.5.2. Fraction 0.63-20mm brut	106
IV.3.5.3. Fraction intermédiaire 0.16-0.63mm brut	106
IV.3.5.4. Fraction fine <0.16mm brut	106
IV.3.5.5. Fraction 0.63-20mm broyée	106
IV.3.5.6. Fraction intermédiaire 0.16-0.63mm broyée	106
IV.3.5.7. Fraction fines <0.16mm	107
<i>IV.3.6. Interprétation des résultats-Discussion</i>	109
IV.3.6.1. Influence de l'échantillonnage	109
IV.3.6.2. Influence du broyage des échantillons	109
<i>IV.3.7. Conclusion</i>	110
IV.4. ANALYSE D'EAU DES PERCOLATS DES CELLULES ET DES COLONNES.	111
<i>IV.4.1. Résultats d'analyse de percolation en cellule et en colonne de la terre polluée non traitée</i>	111
IV.4.1.1. Résultats du test effectué en cellule de percolation	111
IV.4.1.2. Résultats du test effectué en colonne de percolation	112
IV.4.1.3. Résultats d'analyse après test de percolation en colonne sur de la terre polluée pré-traitée à l'aide d'agents chimiques.....	112
IV.4.1.3.1. Résultats d'analyse d'un test de percolation en colonne. Echantillon pré-traité avec le surfactant TRITON X-102.	112
IV.4.1.3.2. Résultats d'analyse d'un test de percolation en colonne. Echantillon pré-traité avec le réactif de FENTON.....	113
<i>IV.4.2. Analyse des résultats</i>	113
IV.4.2.1. Test de percolation mélange : terre + eau	113
IV.4.2.1.1. Test en de percolation forcée en cellule avec contre pression latérale.	113
IV.4.2.1.1.1. Evolution globale.	113
IV.4.2.1.1.2. Evolution par HAP	113
IV.4.2.1.2. Test en colonne	114
IV.4.2.1.2.1. Evolution globale	114
IV.4.2.1.2.2. Evolution par HAP	114
IV.4.2.2. Test de percolation mélange : terre pré-traitée + eau	115
IV.4.2.2.1. Test sur colonne + terre pré-traitée au surfactant TRITON X102	115
IV.4.2.2.1.1. Evolution globale	115
IV.4.2.2.1.2. Evolution par HAP	115
IV.4.2.2.2. Test sur colonne + terre pré-traitée avec le réactif de FENTON.....	116
IV.4.2.2.2.1. Evolution globale	116
IV.4.2.2.2.2. Evolution par HAP	116
IV.5. Interprétation des résultats-discussion	116
CONCLUSIONS-PERSEPETIVES	125
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	129
ANNEXES	141

FIGURES

Figure I-1 : Schéma de fabrication du gaz manufacturé.....	10
Figure I-2 : Produits obtenus par pyrogénéation de la houille.....	12
Figure I-3 : Représentation schématique du devenir des HAP dans le milieu naturel.....	18
Figure I-4 : Représentation des structures chimiques des 16 HAP retenus par l'E.P.A.....	21
Figure I-5 : Mécanismes de migration d'un produit pétrolier au toit de la nappe dans un terrain homogène.....	29
Figure I-6 : Exemple de migration : la nappe n'est pas atteinte par le goudron.....	31
Figure I-7 : Exemple de migration : la nappe est atteinte par le goudron.....	32
Figure II-1: Courbes granulométriques des essais préliminaires d'identification du sable pollué S1.....	36
Figure II-2 : Dispositif de détermination des températures de séchage.....	37
Figure II-3 : Courbes de séchage des échantillons de sol S1.....	38
Figure II-4 : Planche d'identification visuelle des échantillons à la binoculaire.....	40
Figure II-5 : Représentation schématique des agrégats de goudrons observés sur les échantillons du sol S.....	42
Figure II-6 : Observation de la fraction granulométrique inférieure à 2mm.....	43
Figure II-7 : Observation de la fraction granulométrique 2-5mm.....	43
Figure II-8 : Observation de la fraction granulométrique <2mm après calcination à 500°C pendant 18heures.....	43
Figure II-9 : Diffractogrammes RX des échantillons de sol S1 fraction 1-2mm.....	44
Figure II-10 : Diffractogrammes RX des échantillons de sol S1 fraction inférieure à 0,04mm.....	44
Figure II-11 : Représentation des pertes au feu après 18 heures à 300° et 500°C.....	53
Figure II-12 : Représentation des différents taux d'agglomération des échantillons S1 S2 S3 et S4NP.....	59
Figure II-13 : Courbes granulométriques obtenues avant et après traitement en laboratoire.....	60
Figure III-1 : Schéma du dispositif de mesure de la perméabilité en cellule de percolation forcée à contre pression latérale.....	64
Figure III-2 : Courbe Proctor normal.....	67
Figure III-3 : Courbes Proctor de quelques fractions granulométriques des échantillons S2 (pollué) et S 4NP (non pollué).....	68
Figure III-4 : Perméabilité des essais effectués en cellule de percolation, échantillons 1,2,3.....	74
Figure III-5 : Perméabilité des essais effectués en cellule de percolation, échantillons 4, 5, 6.....	75
Figure III-6 : Perméabilité des essais effectués en cellule de percolation, échantillons 7, 8, 9.....	76
Figure III-7 : Perméabilité des essais effectués en cellule de percolation, échantillons 10, 11.....	77
Figure III-8 : Mesures des perméabilités obtenues en cellule de percolation forcée sur les échantillons compactés dynamiquement à l'essai Proctor Normal.....	79
Figure III-9 : Mesures des perméabilités obtenues en cellule de percolation forcée sur un échantillon foisonné (éch 21).....	80
Figure III-10 : Dispositif expérimental utilisé pour les essais de mesure de perméabilité sur colonnes à charge constante.....	83
Figure III-11 : Modes de remplissage des colonnes de percolation.....	83
Figure III-12 : Disposition du contaminant au sein d'une micelle formée de surfactant.....	85
Figure III-13 : Mesures de perméabilité obtenues en colonnes de percolation, à charge constante.....	88

Figure III-14 : Mesures de perméabilité obtenues en colonnes, à charge constante série n°2	89
Figure III-15 : Caractéristiques des échantillons 5 et 6 après mise en place par fluidisation	90
Figure III-16 : Courbes granulométriques des échantillons soumis à percolation après essais.	91
Figure III-17 : Illustration des phénomènes induits lors des essais de percolation sur colonnes et cellules de percolation.	93
Figure III-18 : Représentation de la relation perméabilité / teneur en eau, et densité sèche des différents tests réalisés ($W_{opt}=16\%$).	95
Figure III-19 : Photographie d'un échantillon de sable pollué après essais en colonne.	96
Figure IV-1 : Principe général de fonctionnement de la chromatographie liquide haute performance.....	100
Figure IV-2 : Taux d'agglomération du polluant au sein de l'échantillon S3.....	100
Figure IV-3 : Préparation des échantillons de terre pour les analyses HPLC	101
Figure IV-4 : Répartition totale des 16 HAP en %. sol S3.....	105
Figure IV-5 : Répartition en mg/kg des 16 HAP au sein des différentes fractions granulométriques.	108
Figure IV-6 : Représentation graphique des résultats d'analyse obtenus sur test de percolation en cellule (terre+eau).....	119
Figure IV-7 : Représentation graphique des résultats d'analyse obtenus sur test de percolation en colonne (terre+eau)	120
Figure IV-8 : Représentation graphique des résultats d'analyse obtenus sur test de percolation en colonne (terre pré-traitée au surfactant X102)	121
Figure IV-9 : Représentation graphique des résultats d'analyse obtenus sur test de percolation en colonne (terre pré-traitée au réactif de FENTON)	122

TABLEAUX

Tableau I-1 : Localisation des sous produits de fabrication du gaz.....	13
Tableau I-2 : Principaux composés susceptibles d'être recherchés sur un site d'ancienne usine à gaz.	17
Tableau I-3 : Liste des 31 HAP d'intérêt environnemental.....	19
Tableau I-4 : Guide standard des seuils de pollution.	20
Tableau I-5 : Propriétés physico-chimiques des HAP.....	22
Tableau I-6 : Toxicité des différents sous produits de fabrication du gaz manufacturé.	23
Tableau I-7 : Synthèse des différents types de traitements de dépollution envisageables.	26
Tableau II-1 : Résultats des essais préliminaires d'identification par tamisages granulométriques du sable S1.....	36
Tableau II-2 : Caractéristiques des essais d'identification granulométriques.....	39
Tableau II-3 : Résultats d'essai de calcimétrie sur certaines fractions granulométriques du sable pollué S1.....	45
Tableau II-4 : Détermination des conditions opératoires. Essai de calcination sur de la calcite pure, à 500°C et 600°C pendant 18 heures, en four à circulation d'air.....	45
Tableau II-5 : Pertes au feu moyennes obtenues lors des essais préliminaires sur la fraction 315µm-630µm du sable S1.....	46
Tableau II-6 : Caractéristiques générales après calcination à différentes températures des échantillons S1 observés à la loupe binoculaire.....	47
Tableau II-7 : Résultats des granulométries effectuées sur les échantillons des sols bruts étudiés.	51
Tableau II-8 : Pertes au feu (%) obtenues après calcination à 300°C pendant 18 heures, en four à aspiration des gaz.....	51
Tableau II-9 : Pertes au feu obtenues à 500°C, pendant 18 heures en four à aspiration des gaz. .	52
Tableau II-10 : Résultats des pertes au feu absolues (g/100g de sol) et relatives (%) obtenues à 300°C pendant 18 heures par pondération aux courbes granulométriques.....	54
Tableau II-11 : Répartition absolue (en g/100g de sol) et relative (%) de la pollution assimilée aux pertes au feu à 500°C après 18 heures entre les fractions granulométriques des sols S avec les pertes au feu moyennes.	54
Tableau II-12 : Courbes granulométriques et taux d'agglomération A_i (%) après calcinations des échantillons étudiés.....	57
Tableau II-13 : Taux d'agglomération moyens des différents échantillons S.....	57
Tableau III-1 : Caractéristiques générales de l'essai de compactage Proctor Normal.....	65
Tableau III-2 : Caractéristiques Proctor Normal de l'échantillon S2 pollué, fraction granulométrique inférieure à 2 millimètres $w_{opt}=16\%$	67
Tableau III-3 : Caractéristiques Proctor Normal des échantillons S2 pollué, fraction granulométrique (2-5) millimètres. $w_{opt}=18\%$	67
Tableau III-4 : Caractéristiques Proctor Normal des échantillons S 4NP non pollué fraction granulométrique inférieure à 2 millimètres. $w_{opt}=16\%$	67
Tableaux III-5 : Caractéristiques des échantillons S2 de sol pollué soumis aux essais de percolation forcés avec contre pression latérale.	69
Tableau III-6 : Récapitulatifs des résultats obtenus pour les échantillons 1, 2, 3 testés en cellule de percolation forcée avec contre pression latérale.....	73
Tableau III-7 : Récapitulatifs des résultats obtenus pour les échantillons 4, 5, 6, 7 réalisés en cellule.	73

Tableau III-8 : Récapitulatifs des résultats obtenus pour les échantillons 8, 9, 10, 11 réalisés en cellule.....	73
Tableau III-9 : Caractéristiques des essais de perméabilité réalisés sur des échantillons S2 de sols pollués compactés dynamiquement à l'essai Proctor Normal.	78
Tableaux III-10 : Comparatif des résultats obtenus pour 14 jours d'essai.....	81
Tableau III-11 : Caractéristiques du dispositif utilisé pour l'essai de perméabilité sur colonnes ..	82
Tableau III-12 : Caractéristiques de mise en place des échantillons pour les essais en colonnes ..	84
Tableau III-13 : Caractéristiques du Triton X-102.....	84
Tableau III-14 : Caractéristiques générales des résultats des essais de perméabilités (série 1).....	87
Tableau III-15 : Résultats globaux obtenus après percolation en colonne pendant 41 heures.....	87
Tableau III-16 : Caractéristiques des échantillons de terre <10mm de la 2ème série d'essais de perméabilité sur colonne.	90
Tableau III-17 : Caractéristiques granulométriques des échantillons de la série d'essai n°2.	91
Tableau IV-1 : Résultats d'analyse d'un goudron "pur" par CLHP échantillon S3.	102
Tableau IV-2 : Caractéristiques de l'échantillon S3 déterminées lors de la caractérisation.	102
Tableau IV-3 : Résultats d'analyse de sol par CLHP échantillon S3.	103
Tableau IV-4 : Résultats calculés pour le sol S3 après pondération par l'importance de chaque fraction granulométrique dans la courbe granulométrique.	103
Tableau IV-5 : Part théorique des HAP dans l'analyse de sol S3 après pondération par la courbe granulométrique.....	104
Tableau IV-6 : Pourcentages de la répartition théorique des 16 HAP pour 1 kg de sol brut sec.....	105
Tableau IV-7 : Pourcentages de la répartition théorique des 16 HAP pour 1 kg de sol broyé sec.	105
Tableau IV-8 : Répartition globale (en %) des 16 HAP selon les échantillons et les fractions granulométriques considérées.	105
Tableau IV-9 : Analyse des 16HAP dans la phase aqueuse. Cellule de percolation.....	111
Tableau IV-10 : Analyse des 16HAP dans la phase aqueuse. Colonne 4.	112
Tableau IV-11 : Analyse des 16HAP dans la phase aqueuse. Colonne 5.	112
Tableau IV-12 : Analyse des 16HAP dans la phase aqueuse. Colonne 6 Réactif de FENTON....	113
Tableau IV-13 : Comparaison des seuils de solubilité et des résultats analytiques obtenus lors des premiers dosages pour les différents échantillons S3 soumis aux tests de percolation.....	116

Abréviations

ACE	Acénaphène
ACY	Acénaphthylène
ADEME	Agence pour le développement et la maîtrise de l'énergie
A_i(%)	Taux d'agglomération <i>i</i> du sol exprimé en %
A_m(%)	Taux d'agglomération moyen du sol exprimé en %
ANT	Anthracène
AUE	Acte unique européen
BaANT	Benzo(a)anthracène
BaPYR	Benzo(a)pyrène
BePYR	Benzo(e)pyrène
BbFLT	Benzo(b)fluoranthène
BghiPL	Benzo(<i>ghi</i>)pérylène
BkFLT	Benzo(k)fluoranthène
BTEX	Benzène, toluène, éthylbenzène, xylène
CHY	Chrysène
CIRC	Centre international pour la recherche contre le cancer
CLHP	Chromatographie Liquide Haute Performance
CPG	Chromatographie en phase gazeuse
SM	Spectrométrie de masse
dBaHANT	Dibenz(ah)anthracène
DNAPL	Dense non aqueous phase liquid
EPA	Environmental Protection Agency
EPRI	Electric Power Research Institute
FLT	Fluoranthène
FLU	Fluorène
HAP	Hydrocarbure aromatique polycyclique
IcdPYR	Indeno(cd)pyrène
LNAPL	Light non aqueous phase liquid
NAP	Naphtalène
NAPL	Non aqueous phase liquid
PF_(t°C)	Perte au feu à la température t°C
PHE	Phénanthrène
PYR	Pyrène
RX	Rayons X
WHO	World Health Organization

AVANT PROPOS

Qu'il me soit permis d'exprimer ici ma gratitude à toutes les personnes qui m'ont apporté soutien, conseils et assistance à l'occasion de cette recherche.

Je remercie vivement Monsieur le Professeur Marcel ARNOULD pour m'avoir permis d'entreprendre ces trois années d'études au Centre de Géologie de l'Ingénieur commun à l'Ecole des Mines de Paris et à l'Ecole des Ponts et Chaussées, pour sa confiance, ses conseils, et ses encouragements qu'il m'a témoignés tout au long de ces années.

Je tiens également à exprimer ma reconnaissance à Monsieur Roger STRUILLOU, Maître de recherche à l'Ecole des Mines de Paris, pour avoir accepté de diriger mon travail et pour m'avoir guidé dans mes premiers pas de chercheur. Il a su me faire profiter de sa rigueur scientifique et de son esprit critique et créatif qui m'ont stimulé tout au long de cette recherche.

Je tiens à remercier tout aussi vivement Monsieur le Professeur Maurice CHENEVOY Professeur à l'Université Claude Bernard de Lyon, Département des Sciences de la Terre, qui me fait l'honneur de juger ce travail, et qui fut, quelque part, à l'origine de cette aventure. C'est pour moi, le témoignage d'un intérêt dont je lui suis très reconnaissant.

Je remercie également Monsieur le Professeur Jacques ESTEOULE, Professeur à l'I.N.S.A de Rennes, pour l'intérêt qu'il porte à ce travail en me faisant l'honneur de participer à ce jury en qualité de rapporteur.

Je remercie Monsieur Pascal VERCAMER, Chef de la Division Environnement de la Direction de la Recherche, C.E.R.S.T.A de Gaz de France, pour la confiance qu'il m'a témoignée et grâce à qui ce travail a pu être mené à bien dans les meilleures conditions au sein du laboratoire de biotechnologie et qui m'honore de sa présence dans ce jury.

J'étends bien entendu, ces remerciements à toute l'équipe de recherche de la Division Environnement de Gaz De France, pour l'accueil si chaleureux et si sympathique de ses membres.

Je tiens à remercier Mesdames Maryse CARLIER, Sylvie DESMURS et Jeanne-Marie COSTES pour la sympathie qu'elles m'ont témoignée et leur gentillesse.

Je remercie tout particulièrement Mademoiselle Muriel SIOT sans qui une grande partie de ce travail n'aurait pu être réalisée, pour sa patience, ses idées astucieuses, sa gentillesse et le temps consacré à m'expliquer les subtilités de "l'HPLC".

Je n'oublie pas bien entendu Monsieur Vincent DRUELLE qui a participé pleinement à quelques "manip" en suivant une grande partie de mes travaux au sein du laboratoire de biotechnologie.

Enfin, je serais coupable d'oublier dans ces remerciements Messieurs Hong Phuc N'GUYEN, et "Bernaaard" LEBRETON pour m'avoir fait profiter de leur expérience de terrain, et de leur efficacité à résoudre certains aspects pratiques d'expérimentation.

Je ne dissocie pas non plus de tous ces remerciements, tout le groupe de stagiaires de la Division Environnement, c'est à dire Alexis HASSLER, Fabien SOSSON, Chrystelle TOUSSAIN, Frédéric SENNE, pour l'ambiance qu'ils ont su maintenir au sein de l'équipe.

Je remercie Monsieur Richard G. LUTHY, Directeur du Carnegie Mellon University Laboratory pour toute la documentation qu'il a bien voulu me faire parvenir lors de nos correspondances.

Bien entendu je n'oublie pas tout le personnel technique et administratif du CGI : Mademoiselle Françoise NORE, Messieurs Serge BIHANNIC, Olivier LESAFFRE, Jean SOUVIROU, Mohamed TALBI et Jean Luc TRICOT pour leur aide et leurs compétences techniques qui m'ont été très précieuses.

Je n'oublie pas non plus Mademoiselle Sapho LESOIN et Monsieur Stéphane CURTIL, thésards au CGI avec qui j'ai passé tant de mois.

Je remercie vivement Monsieur Hervé MATHIEU, Directeur de la recherche à l'Ecole Nationale des Ponts et Chaussées et Monsieur Michel DEVEUGHELE, Directeur du C.G.I pour la bourse de recherche qui m'a été attribuée et le soutien financier qui m'ont permis d'aboutir.

Je tiens tout particulièrement à dédier cette thèse à mes parents et à toute ma famille, qui ont dû supporter toutes les péripéties de ma scolarité...

Aussi je remercie tout particulièrement Monsieur Antoine SANTONI, Docteur en Physique nucléaire, Ingénieur principal honoraire à la D.G.A, pour ses nombreux conseils et encouragements prodigués tout au long de ma scolarité, sans lui, je n'aurais peut être pas poussé aussi loin...

Je n'oublie pas non plus Monsieur Eric CORTEGGIANI, Docteur en biochimie, pour tous ses précieux conseils "stratégiques" et pour son aide lors de mon séjour à Paris.

Enfin, je tiens à remercier Monsieur Pierre JF PELLEGRINI, Directeur du département Excavations Souterraines de la société CAMARGO CORREA SA, (Brésil) pour m'avoir encouragé à poursuivre et à terminer ce travail, et avoir dû me supporter lors de mon séjour outre atlantique...

Je ne terminerai pas sans remercier tous mes amis à Paris, et ceux restés dans l'Ile... mais la place manque pour tous les citer !

A tous merci !!!

RESUME

Les usines à gaz, qui fabriquaient le gaz à partir de la houille, ont fonctionné dans le monde entier depuis le début du XIX^{ème} Siècle. La plupart de ces usines ont aujourd'hui arrêté leur activité. Des sous produits ou substances utilisés dans ces usines, comme les goudrons de houille, les phénols, les matières épurantes, peuvent se retrouver dans le sous sol du site. Certains de leurs composés, comme les hydrocarbures aromatiques polycycliques (H.A.P), sont considérés aujourd'hui comme des polluants.

L'objectif de cette étude vise à approfondir, pour le cas des sites d'anciennes usines à gaz, les méthodes de caractérisation des sols pollués par des résidus issus de la pyrolyse de la houille, en insistant sur les aspects liés à la répartition du polluant au sein du sol et aux mécanismes impliqués dans la migration possible des polluants (H.A.P) sous l'effet de circulation d'eau.

Après une brève description du contexte français et de la problématique des anciens sites industriels, une grande importance est donc accordée :

- d'une part à l'étude de la répartition du goudron au sein du sol par l'élaboration d'une méthodologie de caractérisation de la pollution et,
- d'autre part, au suivi de l'évolution de la perméabilité et du transfert de polluants type H.A.P du sol vers l'eau, selon deux approches expérimentales par tests de perméabilité, sous pression avec contrainte latérale, et à pression atmosphérique par écoulement gravitaire.

La partie expérimentale est basée sur trois axes principaux :

- La mise au point d'une méthodologie de caractérisation globale de la charge polluante d'un sol en goudrons issus de la pyrolyse de la houille, par des essais classiques de caractérisation (diffractométrie RX, tests granulométriques, observations à la binoculaire, tests de compactage normalisés, traitement thermique par pertes au feu, en four, à différentes températures).

- L'étude des mécanismes de perméabilité à l'eau au travers d'essais de percolation réalisés sur des éprouvettes de sols contaminés ou non, en cellules de percolation forcée sous pression et contrainte latérale, et en colonnes, à pression atmosphérique, par écoulement gravitaire.

- L'examen des transferts des polluants (16 H.A.P. de la liste EPA) du sol vers l'eau par l'analyse des polluants dans le sol et dans les produits de percolation.

Dans un premier temps, la répartition et la mise en évidence d'un phénomène d'agglomération du sol vis à vis du polluant a été démontrée.

La répartition du goudron et des composés polyaromatiques, considérés comme polluants, au sein du sol semble homogène pour le type d'échantillons étudiés.

L'agglomération et la charge polluante en goudron sont fortement impliquées dans la modification des propriétés comportementales du sol pollué vis à vis des circulations d'eau, et ce, sous différentes conditions d'essais.

Un auto-colmatage des pores semble provoquer une forte diminution des perméabilités, d'où une limitation du transfert de pollution au cours du temps. Les résultats d'analyses montrent que la teneur en polluants des eaux de percolation a elle aussi tendance à se réduire selon un processus analogue.

Mots clés : Goudrons de houille, caractérisation, perméabilité, usines à gaz, hydrocarbures aromatiques polycycliques (H.A.P).

INTRODUCTION

Cette étude s'inscrit dans le cadre d'une recherche financée par Gaz de France, qui a associé la Division Environnement de la Direction de la Recherche de Gaz de France C.E.R.S.T.A (Centre d'Etudes et de Recherches sur les Sciences et les Techniques Appliquées), et le Centre de Géologie de l'Ingénieur, commun à l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris et à l'Ecole des Ponts et Chaussées. L'objectif vise à approfondir pour le cas des sites d'anciennes usines à gaz qui peuvent receler des résidus issus de la pyrolyse de la houille, les méthodes de caractérisation des sols pollués.

La contamination des sols par des produits issus d'épandages, de stockages, ou de fuites d'installations plus ou moins vétustes, peut avoir des incidences sur l'environnement, tant du point de vue de la qualité des ressources en eau potable, que du point de vue de l'hygiène et de la sécurité. Il faut alors compter avec toute une gamme de produits chimiques plus ou moins toxiques, leur utilisation et leur transformation par les industries actuelles ou passées. C'est à travers ce dernier aspect que notre approche prend place.

De 1798, date de l'invention par LEBON du procédé de fabrication du gaz d'éclairage par pyrogénéation de la houille, jusqu'à la fin des années 1960, plusieurs centaines d'usines à gaz ont été exploitées en France.

Chaque usine produisait, à partir de la houille, du gaz dit "manufacturé" ou "gaz de ville" ainsi que des sous produits, coke, goudrons, eaux ammoniacales, bleu de Prusse, qui étaient généralement vendus à la sidérurgie et l'industrie chimique. Le développement du réseau de transport de gaz naturel a entraîné la fermeture, échelonnée dans le temps jusqu'en 1971, de toutes les usines à gaz.

Si les installations de surface ont été généralement démantelées, les derniers sous produits de fabrication encore présents sur les sites n'ont pas toujours été éliminés.

De ce fait, les produits hydrocarbonés répandus sur le sol au cours d'une exploitation industrielle peuvent constituer des foyers potentiels de pollution, dont les effets peuvent apparaître à long terme. L'étude d'une pollution de sols fait apparaître plusieurs difficultés liées à la nouveauté de l'approche, couplée le plus souvent à l'ancienneté et à la latence des phénomènes. Ainsi, le comportement physico-chimique, la biodégradation et la mobilité des polluants dépendent fortement de l'interaction entre le polluant et le sol.

Pendant plus d'un siècle, en faisant partie intégrante du paysage urbain, les usines à gaz ont produit du gaz à partir de la combustion du charbon. Les sous produits de cette fabrication, représentés principalement par les goudrons, les hydrocarbures légers (BTEX : Benzène, Toluène, Ethylbenzène, Xylène), les hydrocarbures aromatiques polycycliques (H.A.P), les phénols et d'autres composés, peuvent se rencontrer sur certains sites.

On regroupe, sous le terme de pollution accidentelle, les ruptures brutales de canalisations, citernes... D'autres pollutions qualifiées elles aussi d'accidentelles, résultent en fait de fuites à faibles débits sous des cuves ou des conduites vétustes, ou bien de dépôts ou résidus solides répandus aux cours des manipulations de produits.

Ce type de pollution peut concerner de grands volumes de sol et présente bien souvent le plus de risques, leur réhabilitation se solde en général par des dépenses très élevées eu égard aux quantités de polluants infiltrées subrepticement dans le sol.

Cette dissémination et l'importance du volume des stockages enterrés, jointes à l'ancienneté des installations sont en relation directe avec l'importance de ces pollutions dont la découverte tardive empêche trop souvent l'application de techniques efficaces de récupération et de traitement.

Le comportement physico-chimique, la biodégradation et la mobilité des polluants dépendent fortement de l'interaction entre le polluant et le sol. La prise en compte des caractéristiques du sol est encore très sommaire pour la prédiction de l'évolution future de pollutions présentes sur des sites d'anciennes usines à gaz. Ces caractéristiques peuvent avoir également une grande influence sur les performances des traitements.

C'est à partir de cette problématique qu'il nous est apparu essentiel de caractériser en laboratoire un type de contamination du sol par ces produits issus de la pyrolyse de la houille, d'identifier et d'appréhender le comportement de ces pollutions, notamment sous l'effet de circulations d'eau.

Pour aborder cette étude, nous exposons en préliminaire (chapitre 1) les caractéristiques générale de la problématique des sols pollués d'anciennes usines à gaz, par la connaissance de la législation en vigueur, des sous produits de fabrication, et leur mode de migration au sein du sol.

La phase expérimentale de notre travail se divise en trois parties :

Dans une première partie (chapitre 2), nous abordons l'étude dans l'optique de la mise au point d'une méthodologie globale de caractérisation expérimentale de la charge polluante d'un sol en goudrons de houille. Une première phase d'observations et d'essais d'identification est décrite. La caractérisation quantitative de la pollution par traitement thermique à différentes températures, en four à moufle à circulation d'air est ensuite exposée, puis la répartition de la pollution au sein des fractions granulométriques.

La seconde partie (chapitre 3), consiste à aborder l'étude du comportement général du sol pollué vis à vis de la circulation d'eau. Ce chapitre décrit des essais de perméabilité à l'eau à charge constante :

- d'une part, sous pression avec contrainte latérale, en cellules de percolation triaxiales et,
- d'autre part, à "pression atmosphérique" par écoulement gravitaire en colonnes sans contre pression latérale. L'étude du comportement mécanique au compactage normalisé est aussi abordée.

La troisième partie (chapitre 4) examine les concentrations en hydrocarbures aromatiques polycycliques (H.A.P) à la fois sur un type de sol pollué et sur les produits de percolation, par chromatographie liquide haute performance. L'utilisation de l'analyse chimique permet d'une part de justifier les hypothèses émises lors des différentes observations faites pendant les phases de caractérisation, et d'autre part d'entrevoir des voies de transfert de polluants d'un milieu à l'autre.

La problématique de notre étude s'articule donc sur les aspects suivants :

- L'observation et l'analyse de la répartition du polluant dans le sol.
- L'étude de l'influence de certains paramètres de mise en place (humidité; granulométrie, charge en polluant)
- L'accessibilité des polluants à l'eau, et leur comportement sous circulation à faible et moyenne pression.

L'étude doit donc permettre de répondre à des questions du type :

- La pollution hydrocarbonée a-t-elle une influence sur la circulation de fluide ?
- Comment le sol pollué réagit-il lors de la mise en place en tas ?
- Comment les caractéristiques d'un sol pollué peuvent être affectées par sa manipulation ?
- En terme d'applications pratiques, la localisation des polluants dans les fractions du sol conditionne les voies de dispersion et les risques de contamination du milieu. Quelles informations les résultats obtenus donnent-ils sur le devenir des polluants dans les sols?
- Quelles sont les caractéristiques du sol qui doivent être prises en compte dans les traitements fortement influencés par les circulations de fluides (air ou eau) tels que les traitements biologiques ou par lavages ?

CHAPITRE I

CONTEXTE : NATURE DES PROBLEMES POSES PAR LA VALORISATION DES ANCIENS SITES INDUSTRIELS D'USINES A GAZ.

I.1. Aspects législatifs et réglementaires.

I.1.1. Définition d'un site pollué

La France ne dispose pas du point de vue réglementaire de définition précise en ce qui concerne les sols pollués. L'ADEME (Agence pour le Développement et la Maîtrise de l'Energie) définit un site pollué comme étant : "Un site sur lequel une pollution d'origine industrielle du sol ou du sous sol est susceptible de provoquer une nuisance ou un risque pérenne pour les personnes ou pour l'environnement."

Dans cette définition, il faut souligner les termes "d'origine industrielle" qui excluent les anomalies géochimiques naturelles et la pollution diffuse d'origine agricole. Les substances polluantes prises en compte sont donc liées, soit à des anciens dépôts de déchets industriels ou ménagers, soit à des infiltrations de substances chimiques polluantes. Il faut distinguer là aussi des pollutions dites :

- diffuses ayant pour origine des infiltrations diverses et continues dans le sol conduisant à des accumulations à long terme de substances toxiques;
- ponctuelles liées à : des déversements accidentels de polluants, des décharges, ou bien des ruptures de canalisations...

Ces deux types de pollutions sont souvent indissociables.

"Une friche industrielle est un espace, comprenant ou non des bâtiments, ayant été occupé dans le passé par des activités industrielles. Ces terrains ne sont pas forcément pollués"

Un site d'ancienne usine à gaz est donc par ces définitions du Ministère de l'Environnement (01.11.1994) une friche industrielle et un site potentiellement pollué.

I.1.2. Nombre de sites d'usines à gaz concernés en France

Selon la récente mise à jour du 1er janvier 1995, d'un recensement qui ne semble pas toujours exhaustif, la situation est la suivante :

- 782 sites ont été recensés.
- 689 ont été nationalisés
- 483 sont actuellement gérés par EDF-GDF.

1.1.3. Evolution de la problématique des sols pollués.

1.1.3.1.Apparition aux USA.

Les Etats Unis, furent les premiers à avoir fait preuve de rigueur en matière de décontamination des sols d'anciens sites industriels. Les raisons motivant la décontamination des sols sont variées et peuvent être commerciales, immobilières, économiques et juridiques, ou bien encore par "civisme écologique" (CAZALAS, 1993). Au cours de la dernière décennie, la charge fiscale et juridique qui s'abat sur les propriétaires de terrains contaminés, fut à la fois imprévue et redoutable (ROSTER, 1991), car ils se trouvèrent condamnés et contraints, parfois même rétroactivement, du fait d'une pollution qu'ils ignoraient, de régler des frais de décontamination très coûteux. Ainsi, tous les pays de tradition industrielle ancienne se trouvent concernés. Les friches abandonnées, précieuses réserves d'espaces, se révèlent brutalement être des sites à risques, considérés comme inutilisables et/ou dangereux (KOLHER, 1991)

L'ampleur du phénomène apparu aux Etats Unis, a conduit les pouvoirs publics à légiférer (LINDSEY, 1994). Puis, accentué, il a atteint ensuite l'Europe vers la fin de la décennie 80, par l'intermédiaire des filiales d'investisseurs américaines soucieuses de se prémunir des risques encourus du fait de leurs acquisitions foncières en Europe.

1.1.3.2.Application à l'Europe.

Ce problème, nouveau en Europe, a été posé vers la fin des années 80, et des grandes hésitations des législations sont apparues dans divers pays (REMOND-GOULLAUD, 1992). La signature de l'Acte Unique Européen (AUE) en 1987 donna un nouveau départ à une politique d'environnement européenne, qui depuis la signature du Traité de Rome en 1957, était quasi inexistante. Elle conduit à une définition de la politique actuelle de l'Union Européenne en matière d'environnement qui est fondée sur trois principes :

- Le principe de l'action préventive, qui permet que soit entreprise toute action en vue de protéger l'environnement. Son but est d'introduire dans les procédures administratives d'autorisations de projets, des principes communs permettant une pré-évaluation des effets des projets industriels et autres sur l'environnement.

- Le principe de rectification à la source, selon lequel toute lésion causée à l'environnement devrait être rectifiée à la source.

- Le principe du pollueur-payeur, qui stipule que le coût de la prévention ou de l'élimination des nuisances doit être supporté par le détenteur des déchets. Ce qui signifie que l'imputation des dépenses relatives aux mesures de lutte contre la pollution, au lieu d'être supportée par l'ensemble de la collectivité, le serait par les pollueurs.

1.1.3.3.La situation française.

La démarche réglementaire quant à la pollution des sols, essaye le plus souvent de s'appuyer sur la législation relative aux installations classées, sur celle relative à l'élimination des déchets et à la récupération des matériaux.

Dans l'ensemble, aucun texte ne permettait jusqu'en 1992 de contraindre un propriétaire à assumer une responsabilité du fait d'une pollution de son sol en l'absence de négligence de sa

part. S'il n'existe pas de directive relative à la protection du sol proprement dite (en effet, la France ne dispose pas de standards de régulation spécifiques sur la pollution des sols, contrairement à d'autres pays européens); la réglementation des installations classées pour la protection de l'environnement a fait, depuis, l'objet de nombreuses modifications importantes (LEPAGE-JESSUA, 1994).

Aux termes de l'article 34 de la loi n°46-628 du 8 avril 1946 sur la nationalisation de l'électricité et du gaz, Gaz de France s'est substitué "de plein droit aux anciens exploitants au jour du transfert, nonobstant toutes dispositions ou conventions contraires, dans tous les droits et obligations compris dans le dit transfert, tant vis à vis des collectivités publiques que des tiers".

Compte tenu de cette disposition, ainsi que de la jurisprudence administrative, GDF se trouve soumis, à l'égard des nuisances générées par des résidus d'exploitation d'anciennes usines à gaz, aux obligations résultant des textes qu'on évoque ci -après. (MAUPOIL, 1995). Le régime juridique des terrains sur lesquels ont été implantées d'anciennes usines de production de gaz, résulte essentiellement de l'application des lois sur les pollutions :

- **n°75-633 du 15 juillet 1975** relative à l'élimination des déchets et à la récupération des matériaux. Ce texte est susceptible de s'appliquer à GDF lorsque celui-ci n'a plus la propriété ni la garde des sites et des résidus qui s'y trouvent, ces derniers ayant été cédés ou remis dans des conditions assimilables à un abandon. Dans cette hypothèse, l'autorité de police peut, après mise en demeure, faire assurer l'élimination des déchets aux frais de l'entreprise.

- **n°76-663 du 19 juillet 1976** relative aux installations classées pour la protection de l'environnement, modifiée en dernier lieu par la loi n° 92-646 du 13 juillet 1992, et son décret d'application du 21 septembre 1977 modifié.

Ces textes prescrivent à Gaz de France de remettre les sites d'anciennes usines à gaz dans un état tel que ne s'y manifeste aucun danger ou inconvénient pour la commodité du voisinage, la santé, la sécurité et la salubrité publiques, l'agriculture, la protection de la nature et de l'environnement, ainsi que pour la conservation des sites et des monuments.

De plus, le Préfet peut à tout moment imposer à l'entreprise des prescriptions relatives à la remise en état du site, et faute de satisfaire aux obligations dans un délai déterminé, il peut la contraindre à consigner une somme répondant du montant des travaux à réaliser et faire exécuter ces derniers aux frais de l'entreprise.

Par ailleurs, lorsque GDF vend un terrain sur lequel a été exploitée une ancienne usine à gaz, l'acheteur doit obligatoirement en être informé par écrit sous peine de résolution de la vente, de restitution d'une partie du prix ou de l'obligation de remise en état du site aux frais du vendeur.

- **n°92-646 du 13 juillet 1992** qui modifie la loi n°76-663, dans le but de simplifier et de rationaliser la liste des installations soumises à réglementation. Parallèlement, les "arrêtés types" régissant le fonctionnement des installations soumises à déclaration ont été progressivement modernisés. Ainsi l'arrêté du 1er mars 1993 dit "arrêté intégré", en abrogeant plus de 30 textes antérieurs, rassemble toutes les dispositions applicables à un grand nombre d'installations classées soumises à autorisation. Le décret d'application du 9 juin 1994, complète cette loi, en élargissant le champ de l'étude d'impact aux effets indirects et temporaires de l'installation sur son environnement.

- **n°92-3 du 13 janvier 1992** sur l'eau.

Ce texte prévoit que le Préfet peut prescrire au responsable d'un incident ou d'un accident présentant un danger pour la qualité, la circulation ou la conservation des eaux, les mesures à prendre pour mettre fin au dommage constaté. Il peut faire exécuter les mesures nécessaires aux frais et risques du responsable.

- n°95-101 du 2 février 1995 (loi Barnier) sur le renforcement de la protection de l'environnement ne remet pas en cause les fondements du régime juridique applicable, mais intègre au droit français le principe du "pollueur - payeur".

I.1.4. Politique du Ministère de l'Environnement

Une réflexion en vue de fixer des règles de réhabilitation est engagée depuis quelques mois au sein d'un groupe de travail national sur les sites et sols pollués, au Ministère de l'Environnement. Les principaux axes de cette politique sont exposés dans une circulaire du 3 décembre 1994. Celle-ci installe une véritable politique de réhabilitation et de traitements des sites. Elle est fondée actuellement sur trois grands principes :

- la recherche systématique des sites potentiellement pollués;
- la définition concertée de priorités par l'évaluation simplifiée des risques et de la vulnérabilité de chaque site (hiérarchisation des sites);
- le traitement de chaque site qui doit dépendre de l'impact effectif qu'il provoque et de l'usage auquel il est destiné.

I.1.5. Du problème... à sa résolution...

Le droit de l'Environnement est originairement une des branches du droit de la responsabilité, et, de ce fait, dans la problématique établie, la responsabilité civile (qui n'a été que partiellement effleurée dans notre propos) devient un outil juridique et financier qui permet d'imputer à l'auteur d'un dommage la prise en charge de l'indemnisation des victimes, mais aussi le coût de restauration du milieu.

Dans cette logique, il faut que le dommage ou préjudice - pour être pris en compte juridiquement - présente plusieurs caractéristiques cumulatives :

- tout d'abord, il doit présenter une consistance permettant de l'identifier : le milieu naturel étant particulièrement hétérogène, c'est la concentration anormale qui doit être pris en compte. Pour le cas des usines à gaz, cette pollution est plus facile à mettre en évidence (goudrons, HAP...);
- ensuite, il doit excéder le seuil de tolérance supportable pour une collectivité, ce qui implique le recours à des critères objectifs que sont l'intensité et la durée;
- enfin il doit s'apprécier par rapport à la situation des victimes (seuil de tolérance, toxicologie...).

D'autre part, l'indispensable lien de causalité doit être démontré, c'est à dire que quel que soit le régime juridique sous lequel on se place (responsabilité ou contentieux de l'indemnisation), pour être indemnisée, la victime doit prouver que le dommage résulte d'un acte de la partie amenée en justice. Les dommages à l'environnement posent à cet égard des problèmes spécifiques.

Pour ceci, elle dispose de l'audit, dans le cas d'un terrain ancien, ou de l'étude d'impact pour un futur projet. A titre indicatif, l'étude d'impact permet :

- à l'autorité administrative qui aura à approuver un projet de le faire en toute connaissance de cause;
- d'être un instrument permettant d'aider le maître d'ouvrage à conduire le projet sur l'environnement;
- de constituer une étude sur les conséquences qu'entraînera le projet sur l'environnement.

Nous comprenons bien alors :

- que lors de l'acquisition d'un terrain, ou de l'achat d'une entreprise, l'état du sol devient un élément clé de la négociation;
- qu'en voie de normalisation, l'audit des sols et l'étude d'impact devraient permettre de mettre l'acquéreur à l'abri de mauvaises surprises...encore faut-il que l'audit soit réalisé correctement...car souvent, la latence des pollutions et la migration des polluants dans les sols peuvent passer inaperçues lors d'investigations succinctes des sols...

Enfin, l'absence actuelle de normes françaises spécifiques fixant des seuils de dépollution des sols devrait être comblée par la nouvelle réglementation et la hiérarchisation des sols pollués (action menée par le Ministère de l'Environnement). Mais la mise en place de cette réglementation se heurte au manque de données scientifiques. Or cette démarche française, volontairement plus pragmatique que celle d'autres pays, permet, à long terme d'acquérir ces données

Le problème des pollutions de sols n'en reste pas moins complexe, car il est bien entendu : chaque pollution du sol est un cas particulier. S'ajoute au premier problème évoqué, que vouloir dépolluer systématiquement un sol pour revenir à "l'état initial" avant la pollution risque parfois d'être illusoire. En revanche, l'idée de vouloir donner à un sol des seuils acceptables est intéressante. Encore faut-il, dans ce cas, caractériser cette dernière au moyen de paramètres représentatifs tels que la nature des polluants, leur concentration, la masse de polluants en jeu, la fraction de substances mobilisables en particulier dans l'eau ou dans l'air pour certains types de polluants, la localisation de ces derniers au sein du sol, leur type d'épanchement, de migration et leur dispersion à court, à moyen, et à long terme...

Il convient de considérer également les modes d'interférences de la pollution autres qu'au travers des milieux vecteurs (eau et air), mais aussi au travers du contact direct avec le sol et de l'impact sur la chaîne alimentaire, via la toxicologie des éléments. Autant de questions qui suscitent de nombreux débats d'experts.

L2. Origine du problème : la fabrication du gaz de ville, fonctionnement d'une usine à gaz

Pour comprendre et connaître les polluants susceptibles d'être rencontrés sur un site d'ancienne usine à gaz, il est nécessaire de connaître le mode de fabrication et les différentes étapes de fabrication du gaz de ville à partir de la houille.

Même si l'organisation d'une usine à gaz varie d'un site à l'autre, même si la composition de la houille pouvait être différente, le schéma de principe est toujours le même, il est représenté en figure I-1.

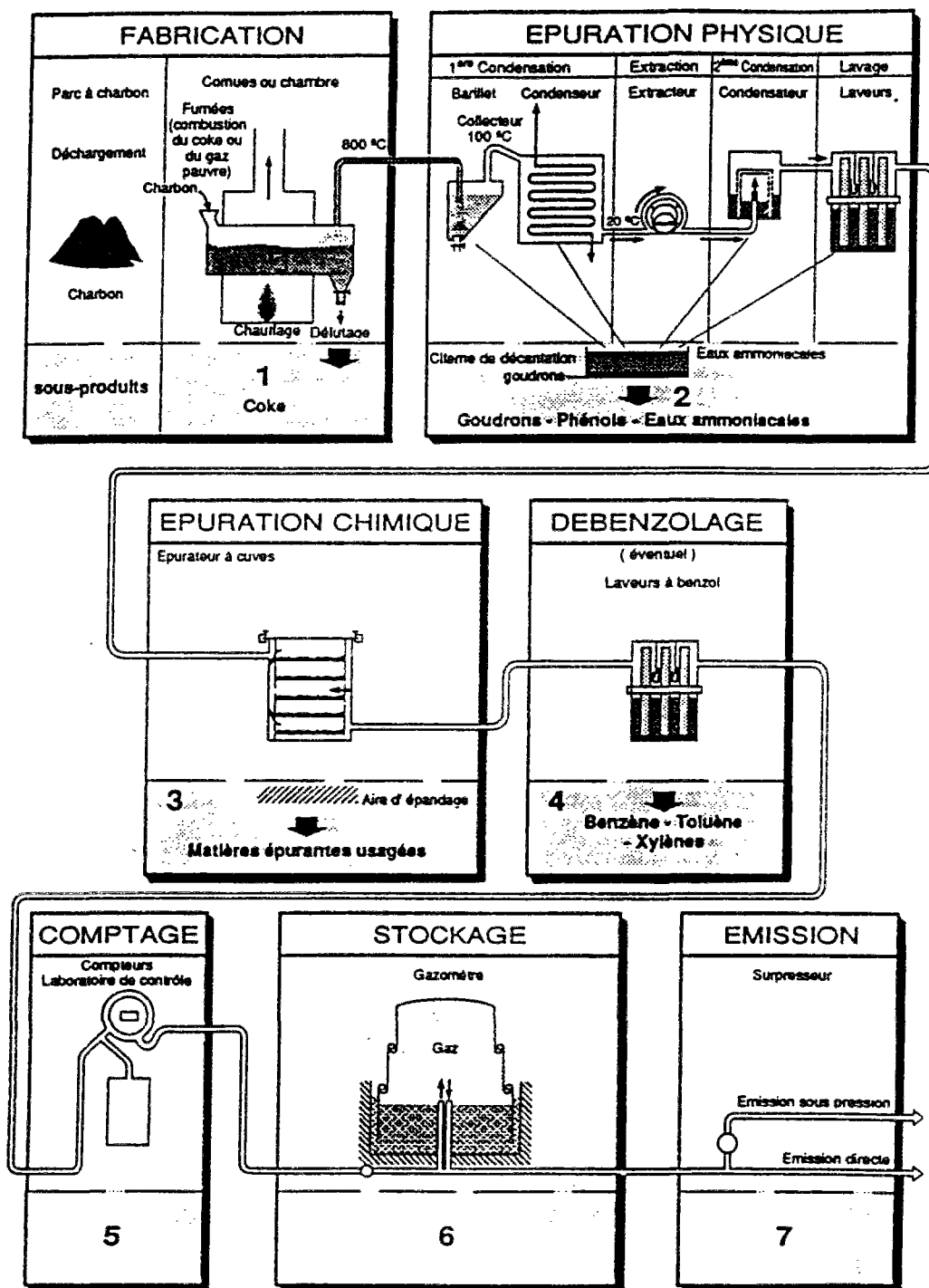


Figure I-1 : Schéma de fabrication du gaz manufacturé.

Le gaz de ville était produit par pyrogénéation qui consiste à chauffer, à l'abri de l'air, de la houille, le plus souvent à haute température (1000°C), dans un four muni d'une tubulure de dégagement, ou, parfois, à plus basse température 500°C, ce qui modifiait la composition des produits obtenus (à haute température on obtenait un meilleur rendement c'est à dire plus de gaz et moins de goudrons). Le traitement durait entre 10 et 24 heures par fournée.

La pyrolyse (pyrogénéation à l'abri de l'air), est donc une réaction de décomposition thermique du charbon sous atmosphère inerte. Les réactions chimiques qui accompagnent cette transformation du charbon sont rapides et nombreuses. Elles produisent un mélange de substances gazeuses, liquides et solides dont les propriétés dépendent du charbon, du traitement thermique, et de la température utilisés (LEE, 1990).

Le gaz obtenu était ensuite traité : il subissait une épuration physique pour le débarrasser du goudron, de l'eau et des vapeurs ammoniacales, puis une épuration chimique dans un mélange d'oxyde ferrique, de chaux éteinte et de sciure de bois humide retenant l'hydrogène sulfuré et divers cyanures, et enfin un débenzolage au charbon actif.

Le gaz, complètement épuré, était refoulé dans un gazomètre, d'où il était distribué chez les usagers.

Le coke, résidu carboné de la pyrogénéation, pouvait subir une gazéification à basse pression avec production de gaz à l'air (CO), ou de gaz à l'eau (CO+H₂), au moyen de gazogènes. Le gaz à l'air et le gaz à l'eau ont pu être utilisés pour diluer les gaz de houille à trop haut pouvoir calorifique.

I.2.1. Les sous produits de fabrication du gaz

1 tonne de houille produisait :

- ♦ 300 à 350m³ de gaz.
- ♦ 50 à 80 kg de goudrons dont la composition était :
 - huiles légères (Benzène, Toluène, Ethylbenzène, Xylène = BTEX)
 - huiles moyennes (Phénols, naphtalène)
 - huiles lourdes (fluorène, anthracène)
 - brai
 - composés oxygénés, sulfurés, azotés.
- ♦ 100 à 150 l d'eaux ammoniacales (contenant 2 à 2.5 Kg d'ammoniac, NH₃)
- ♦ 700 kg de coke (à 2% de matières volatiles).

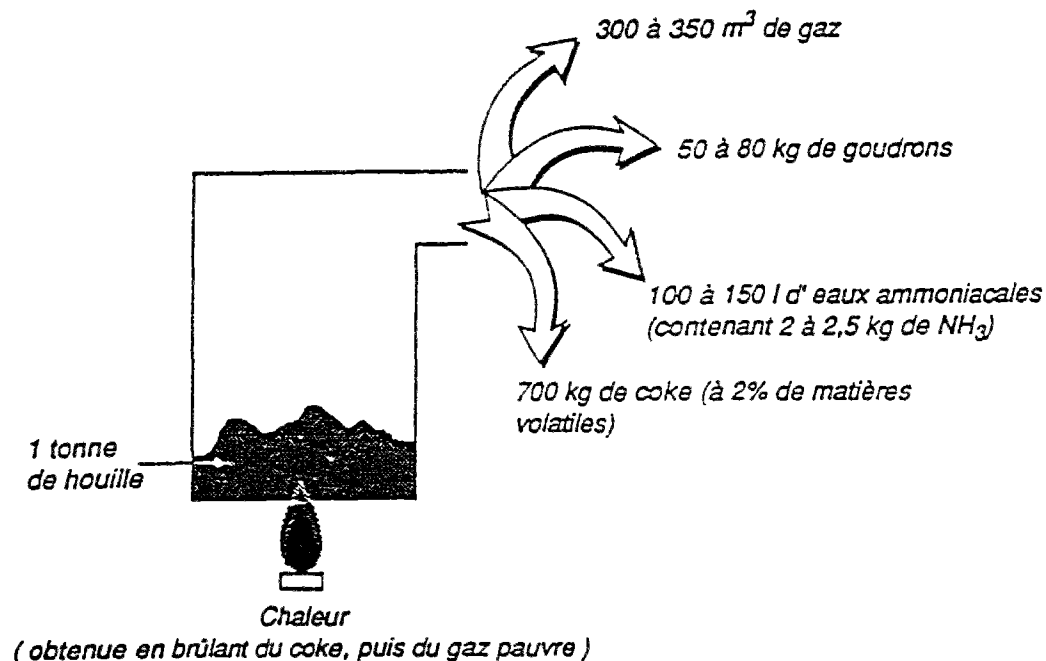


Figure I-2 : Produits obtenus par pyrogénéation de la houille.

L'ensemble des opérations de production du gaz nécessitait la récupération des sous produits : goudrons, eaux ammoniacales et matières épurantes usagées.

Ce sont ces trois familles de sous-produits qui sont susceptibles d'être retrouvées sur les sites d'anciennes usines à gaz.

1.2.1.1. Localisation des sous-produits de fabrication du gaz

A chaque étape décrite ci-dessus correspond un certain nombre de sous-produits qui peuvent être retrouvés sur les sites. On peut les localiser schématiquement par zone d'exploitation.

ZONE SUR LE SITE	SOUS-PRODUITS
stockage de charbon et de coke	fines de charbon coke
fours chaufferie	fines de charbons coke mâchefer cendres
barillets, jeux d'orgues condenseurs laveurs	goudron eau ammoniacale résidus de lavage (huile)
épurateurs	masses épurantes saturées
unité de débenzolage	composés aromatiques volatils (BTX)
cuves de décantation et de récupération conduites enterrées	goudron eau ammoniacale
gazomètres	eau de garde, huile d'isolement

Tableau I-1 : Localisation des sous produits de fabrication du gaz.

Les zones principales de localisation des sous produits rencontrés sont principalement les cuves à goudrons et eaux ammoniacales, et les aires de stockage des masses épurantes usagées.

1.2.1.2. Utilisation des sous produits de fabrication du gaz

Aujourd'hui considérés comme des déchets parce qu'ils sont restés en place, ces sous produits étaient autrefois valorisés. Par exemple :

- ♦ le coke était essentiellement utilisé comme source d'énergie par l'industrie sidérurgique (ou sur place); il a représenté jusqu'à 20% des recettes de Gaz de France; ainsi certaines grandes cokeries gazières ont été créées pour produire à la fois du gaz et du coke;
- ♦ les eaux ammoniacales pouvaient être utilisées pour la production d'engrais (sulfate d'ammoniac);
- ♦ les matières épurantes usagées étaient soit mises en décharge soit valorisées comme engrais ou dans l'industrie chimique pour l'utilisation du bleu de Prusse;
- ♦ les goudrons à l'état brut servaient de protection des bois de charpente, au goudronnage des routes... après transformation, l'industrie chimique les utilisait pour fabriquer des colorants, des solvants, des produits de parfumerie.

1.2.2. Caractéristiques des polluants

Les paramètres physico-chimiques les plus importants à considérer pour l'évaluation des risques en terme de pollution, sont l'état physique et l'état chimique dans lequel se trouve le polluant, sa solubilité dans l'eau, sa volatilité, sa densité, son explosivité.

1.2.2.1. L'état physique

L'état physique du polluant est important à prendre en compte car c'est un des paramètres lié au risque de migration (forme liquide ou solide, forme libre ou adsorbée). D'autre part, suivant l'état physique, l'exposition au polluant ne sera pas la même. Ainsi un composé sous forme vapeur aura l'inhalation pour voie d'exposition privilégiée. Sur un site d'ancienne usine à gaz, les composés que nous avons décrits dans le paragraphe précédent, sont susceptibles d'être rencontrés sous toutes les formes physiques. Pour les principaux, nous retrouvons :

Les composés minéraux :

- Les matières épurantes contiennent principalement des complexes de fer et de cyanure qui sont solides.
- Les eaux ammoniacales contiennent principalement des ions ammoniums.

Les composés organiques :

- Le benzène, se retrouve sous forme liquide ou gazeuse le plus souvent.
- Les phénols, sont normalement des solides, mais comme ils sont très solubles dans l'eau, on peut les retrouver dans la phase aqueuse.
- Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP), qui sont normalement à l'état solide, peuvent se retrouver dans les goudrons sous forme liquide, pâteuse ou solide. On peut les retrouver également dans la phase gazeuse piégée dans le sol et sous forme dissoute dans l'eau.

1.2.2.2. L'état chimique

L'état chimique dans lequel se trouve un polluant détermine sa toxicité et sa stabilité. Le terme générique de cyanures par exemple, n'est pas suffisant, car si le risque lié à la présence de cyanures libres (CN⁻) est effectivement important en raison de leurs propriétés physico-chimiques et de leur forte toxicité, il n'en est absolument pas de même pour des cyanures engagés dans une combinaison stable (cas des matières épurantes), dont la toxicité n'est apportée que par leur éventuelle décomposition en cyanures libres.

1.2.2.2.1. La solubilité dans l'eau

Il s'agit essentiellement des composés organiques volatils benzène, toluène, éthyl-benzène, xylène (BTEX) et du phénol qui sont solubles dans l'eau.

A l'exception du naphthalène, les hydrocarbures aromatiques polycycliques sont peu, voire très peu solubles dans l'eau, puisque leur solubilité est de l'ordre du $\mu\text{g/l}$, et décroît avec le nombre de cycles (on passe ainsi de $35000\mu\text{g/l}^{-1}$ pour le Naphthalène à $0.5\mu\text{g/l}^{-1}$ pour le Benzo(g,h,i)pérylène). En revanche, la solubilité d'un composé conditionne son transfert vers l'eau et de fait, vers la nappe phréatique.

I.2.2.2.2.La volatilité

La volatilité d'un composé conditionne son transfert dans l'air. Les BTEX (Benzène Toluène, Ethylbenzène, Xylène) peuvent se retrouver dans la phase gazeuse du sol ou l'air ambiant, et par migration dans l'air du sol s'accumuler dans les bâtiments; les H.A.P resteront préférentiellement adsorbés sur les particules de sol.

I.2.2.2.3.La densité

Tous les HAP, y compris le naphthalène, ont une densité supérieure à 1 (par exemple, le naphthalène a une densité de 1.14 et le benzo(a)pyrène une densité de 1.28), ils sont donc tous plus lourds que l'eau.

Les HAP auront donc tendance à descendre au fond de l'aquifère. C'est le contraire pour les BTEX, qui ayant une densité inférieure à 1, se retrouveront en surface de l'aquifère.

I.2.2.2.4.L'explosivité

Dans le cas des anciennes usines à gaz, le risque éventuel est lié à la présence des BTEX essentiellement. Mais l'expérience montre que, sur les sites d'anciennes usines à gaz, les concentrations en BTEX, lorsqu'ils sont présents, sont de l'ordre de quelques ppm maximum; ainsi le risque d'explosivité lié à ces produits est limité, sauf cas particulier d'existence de zones d'accumulation.

I.3. Nature des sous produits d'anciennes usines à gaz, composition et localisation.

I.3.1. Les goudrons.

Composition :

Les goudrons de houille renferment, en grande majorité, des hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP), et d'autres composés en plus faible proportion tels que des hydrocarbures monoaromatiques volatils (Benzène, Ethylbenzène, Toluène, Xylène ou BTEX), des phénols... Cependant, la composition exacte des goudrons est variable en raison du nombre très important de composés chimiques qu'ils renferment (plusieurs centaines), de leurs proportions relatives qui varient en fonction de différents paramètres tels que la nature du charbon, la température de pyrogénéation...et de leur possible dégradation dans le temps.

Localisation :

Les goudrons étaient généralement stockés, en attendant leur valorisation, dans des cuves réalisées en maçonnerie et enterrées dans le sol. Cependant, le sol a pu être contaminé lors de déversements accidentels, ou lorsque les cuves fuyaient...

Si le sol garde, en général, une trace de l'ancienne activité gazière, l'eau souterraine est souvent épargnée. Toutefois des phénomènes de dissolution de certains polluants peuvent conduire à une contamination de la nappe.

I.3.2. Les eaux ammoniacales.

Composition :

Elles renferment des ions ammonium ainsi que des composés organiques tels que BTEX, phénols et certains HAP. Elles peuvent également contenir des composés sulfurés et cyanurés.

Localisation :

On les retrouve dans les cuves, soit seules, soit en phase surnageante au dessus de la phase goudronneuse. Les ions ammonium sont très souvent détectés dans les eaux souterraines à des concentrations dépassant les valeurs indiquées dans le décret français 89-3 du 03 janvier 1989 relatif aux eaux souterraines destinées à la consommation humaine.

I.3.3. Les matières épurantes

Composition :

Les matières épurantes que l'on retrouve sur certains sites d'anciennes usines à gaz contiennent principalement des composés sulfurés et des complexes de fer et de cyanures (tels que le ferrocyanure ferrique ou bleu de Prusse, de formule chimique $\text{Fe III } 4 [\text{FeII}(\text{CN})_6]3$). Elles sont susceptibles de contenir aussi des cyanures libres, des métaux, des produits organiques tels que les HAP, ainsi que des copeaux de bois.

Localisation :

Généralement, elles sont retrouvées en surface ou enfouies dans le sol, seules ou associées aux goudrons. Leur couleur bleue caractéristique et l'absence de végétation permet de les repérer facilement.

Le tableau I-2 rassemble les principaux composés susceptibles d'être présents sur un ancien site d'usine à gaz.

Minéraux	Métaux/métalloïdes	Organiques volatils	Phénols	16 HAP (EPA)
Ammoniaque Cyanures libres Cyanures complexés	Arsenic Cadmium Chrome Fer Plomb Mercure Nickel Zinc	Benzène Ethyle benzène Toluène Xylènes	Phénol	Naphtalène Acénaphthylène Fluorène Phénanthrène Anthracène Fluoranthrène Pyrène Chrysène Benzo (a)anthracène Benzo(a)pyrène Benzo(b)fluoranthène Indéno (1,2,3-cd)pyrène Benzo(g,h,i)pérylène Dibenzo(a,h)anthracène.

Tableau I-2 : Principaux composés susceptibles d'être recherchés sur un site d'ancienne usine à gaz.

I.3.4. Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (H.A.P).

Parmi les constituants des goudrons les hydrocarbures aromatiques polycycliques (H.A.P), posent le plus fort problème d'élimination, dans la mesure où on les retrouve encore à de fortes concentrations dans les sols, et qu'ils ont des propriétés physico-chimiques très complexes (persistance dans le milieu, adsorption élevée...) (BURLE, 1992).

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques sont des molécules organiques non polaires, neutres, qui comprennent deux ou plusieurs cycles benzéniques arrangés suivant de multiples configurations. Parce qu'ils sont susceptibles de se retrouver dans l'eau malgré une assez faible solubilité, et parce qu'ils présentent un risque de mutagénécité important, l'agence pour la protection de l'environnement des Etats Unis d'Amérique (United States Environmental Protection Agency - EPA) a inclu une liste de 16 HAP sur sa liste des polluants à détecter dans les effluents industriels (KEITH et TELLARD, 1979). De plus, la World Health Organisation (Organisation Mondiale de la Santé) a recommandé certaines limites pour les HAP contenus dans l'eau de consommation. Ces polluants sont figurés dans le tableau I-3.

De nombreuses études menées aux Etats Unis durant les années 1970 à 1980 ont montré que l'analyse de nombreux aquifères non contaminés, donne des concentrations naturelles en hydrocarbures aromatiques polycycliques voisines de 0.001 à 0.01 µg/l. L'origine de ces HAP a été identifiée comme étant générés par des pyrolyses naturelles telles que des incendies, ou des réactions organiques dans les sédiments (BLUMER, 1976; GOURDON, 1994). En revanche, les origines anthropogéniques sont beaucoup plus importantes que les concentrations attribuées aux origines naturelles. La contamination des eaux par de tels composés représente un problème crucial car d'une part, les HAP peuvent être dangereux à des concentrations faibles et certains d'entre eux se dégradent lentement (RYAN et DHIR, 1993) ; d'autre part, on possède peu d'informations spécifiques sur le comportement de tels composés dans le sous sol puisqu'ils sont faiblement solubles en milieu aqueux et que leur biodisponibilité est étroitement liée aux phénomènes d'adsorption/désorption sur les particules de sol sur lesquelles ils se fixent facilement en particulier sur la fraction organique des sols (GOURDON et BAYARD, 1994; KARICKHOFF, 1984). Enfin, ces composés sont produits en grande quantité dans

l'industrie chimique, le raffinage pétrolier, et les industries de conversion d'énergie première (cokerie et usines à gaz).

On retrouve ainsi ces hydrocarbures aromatiques polycycliques, dans des mélanges complexes formés lors de la combustion incomplète ou de la pyrolyse de matériaux organiques. Ils entrent aussi, à des concentrations diverses, dans la composition de certains matériaux tels que : le noir de carbone, certains bitumes, les huiles minérales et extraits aromatiques, le goudron de houille et ses dérivés (huiles anthracéniques et brai). C'est dans ce dernier type de composé que les teneurs en HAP sont les plus importantes. Le devenir des hydrocarbures aromatiques polycycliques dans le milieu naturel est schématiquement représenté en figure I-3.

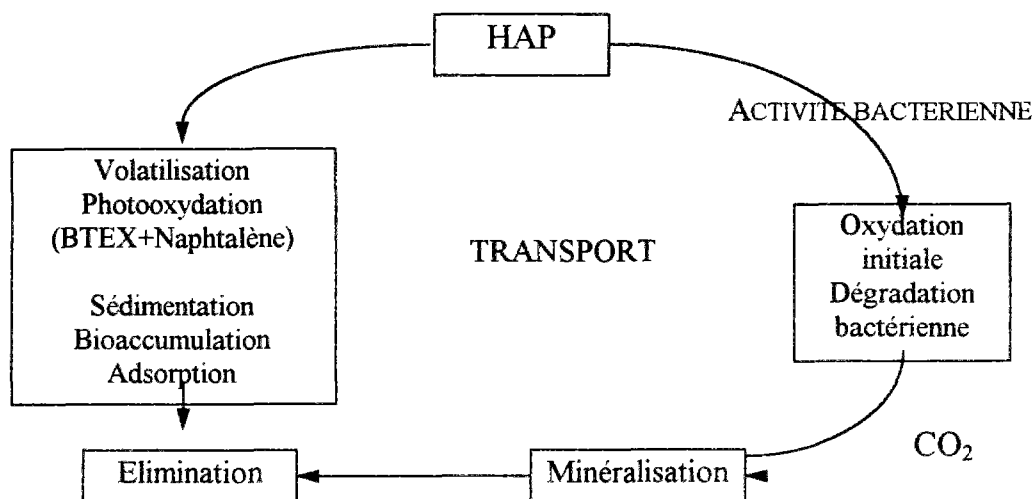


Figure I-3 : Représentation schématique du devenir des HAP dans le milieu naturel.

HAP	Nombre de cycles	Formule chimique	Poids moléculaire	Potentiel Cancérogène ^a	Géno-toxicité ^b	Mutagénécité ^c	Liste des polluants
Naphtalène	2	C ₁₀ H ₈	128				E
Acenaphthylène	3	C ₁₂ H ₈	152				E
Acénaphtène	3	C ₁₂ H ₁₀	154				E
Fluorène	3	C ₁₃ H ₁₀	166	I	L	-	E
Anthracène	3	C ₁₄ H ₁₀	178	N	N	-	E
Phénanthrène	3	C ₁₄ H ₁₀	178	I	L	+	E
Fluoranthène*	4	C ₁₆ H ₁₀	202	N	L	+	E, W
Pyrène	4	C ₁₆ H ₁₀	202	N	L	+	E
Benzo(a)fluorène	4	C ₁₇ H ₁₂	216	I	I	?	
Benzo(b)fluorène	4	C ₁₇ H ₁₂	216	I	I	?	
Benzo(c)fluorène	4	C ₁₇ H ₁₂	216	I	I	?	
Benzo(a)anthracène	4	C ₁₈ H ₁₂	228	S	S	+	E
Benzo(c)phénanthrène	4	C ₁₈ H ₁₂	228	S	I	+	
Chrysène*	4	C ₁₈ H ₁₂	228	L	L	+	E
Triphénylène	4	C ₁₈ H ₁₂	228	I	I	+	
Benzo(g,h,i)fluoranthène	5	C ₁₈ H ₁₀	226	I	I	+	
Benzo(b)fluoranthène*	5	C ₂₀ H ₁₂	252	S	I	+	E
Benzo(j)fluoranthène	5	C ₂₀ H ₁₂	252	S	I	+	W
Benzo(k)fluoranthène*	5	C ₂₀ H ₁₂	252	S	I	+	E, W
Benzo(a)pyrène*	5	C ₂₀ H ₁₂	252	S	S	+	E, W
Benzo(e)pyrène	5	C ₂₀ H ₁₂	252	I	L	+	
Pérylène	5	C ₂₀ H ₁₂	252	I	I	+	
Dibenzo(a,c)anthracène	5	C ₂₂ H ₁₄	278	L	S	+	
Dibenzo(a,h)anthracène	5	C ₂₂ H ₁₄	278	S	S	+	E
Anthanthrène	6	C ₂₂ H ₁₂	276	L	I	+	
Benzo(g,h,i)perylène*	6	C ₂₂ H ₁₂	276	I	I	+	E, W
Indeno(1,2,3-cd)pyrène*	6	C ₂₂ H ₁₂	276	L	I	+	E, W
Dibenzo(a,h)pyrène	6	C ₂₄ H ₁₄	302	S	I	+	
Dibenzo(a,i)pyrène	6	C ₂₄ H ₁₄	302	S	I	+	
Dibenzo(a,l)pyrène	6	C ₂₄ H ₁₄	302	S	N		
Coronene	7	C ₂₄ H ₁₂	300	I	I	+	

Tableau I-3 : Liste des 31 HAP d'intérêt environnemental d'après US E.P.A et W.H.O (LUTHY et Al, 1994, modifié) et (BOUCHEZ,1995) Les 16 HAP de la liste EPA recherchés dans l'analyse chimique courante sont figurés en caractères gras.

* HAP appartenant à la liste de 7 HAP susceptibles d'être présents en quantités importantes dans l'air et la nourriture (BOUCHEZ, 1995)

• HAP appartenant à la liste des 6 HAP retenus pour la norme européenne relative aux eaux potables.(Quantité totale des 6 HAP <200ng/l⁻¹ (BOUCHEZ, 1995).

a) Par expérimentation animale preuves de cancérogénécités suffisantes (S) ou limités (L), données insuffisante (I)

(N) non cancérogène.

b) Tests de génotoxicité à court terme (détérioration de l'ADN, mutagénécité, anomalies chromosomiques)

c) Mutagénécité dans le test de *Salmonella typhimurium* (Résultats positif (+) négatifs (-) ou non concluants (?)) (données bibliographiques, BOUCHEZ, 1995)

1.3.4.1. Formulation chimique.

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques sont, pour la majorité d'entre eux, des composés à noyaux benzéniques, pour d'autres, il s'agit de systèmes comprenant d'autres cycles que des cycles benzéniques. Ils sont donc classés suivant leur nombre de cycles. La structure chimique des 16 HAP listés par l'E.P.A est donnée sur la figure I-4

1.3.4.2. Valeurs de référence pour les concentrations

	SOLS		EAUX SOUTERRAINES	
	mg/kg de matière sèche (ppm)		µg/l (ppb)	
Composés aromatiques volatils	S	I	S	I
benzène	0.05	1	0.2	30
toluène	0.05	130	0.2	1.000
éthylbenzène	0.05	50	0.2	150
xylène	0.05	25	0.2	70
phénol	0.05	40	0.2	2.000
HAP				
naphtalène*	0.015		0.1	70
acénaphthalène				
acénaphthène				
fluorène				
phénanthrène*	0.045		0.02	5
anthracène*	0.050		0.02	5
fluoranthène*	0.015		0.005	1
pyrène				
benzo(a)anthracène*	0.020		0.002	0.5
chrysène*	0.020		0.002	0.05
benzo (b) fluoranthène				
benzo (k) fluoranthène*	0.025		0.001	0.05
benzo (a) pyrène*	0.020		0.001	0.05
indéno (1,2,3,-cd) pyrène*	0.025		0.0004	0.05
dibenzo (a,h) anthracène				
benzo (g,h,i) pérylène*			0.0002	0.05
Total somme 10 HAP (*)	1	40	-	-

Tableau I-4 : Guide standard des seuils de pollution PAYS BAS (1994). (S=Valeur de base. I=Valeur d'intervention (opération de dépollution)).

1.3.4.3. Propriétés physico chimiques des HAP

Dans ce paragraphe, nous présentons les propriétés physico-chimiques et toxicologiques des HAP, puisque nous travaillons sur des sols pollués issus d'un site industriel gazier.

Ces composés représentent un groupe complexe qui montrent des degrés de biodégradabilité différents. Cette diversité est due à la fois à des facteurs biologiques et environnementaux, et à des propriétés physico-chimiques particulières.

Il n'en reste pas moins, que, malgré de nombreux travaux réalisés sur leur biodégradation en laboratoire (EPRI, 1992, LUTHY et Al, 1993; THIEM, 1994; BOUCHEZ, 1995), le problème de la disponibilité des HAP demeure complexe. C'est en effet cette disponibilité qui conditionne l'efficacité d'un traitement par dégradation biologique. En revanche, cette disponibilité conditionne la pollution en terme de risque, de dispersion par transferts des polluants vers la nappe phréatique.

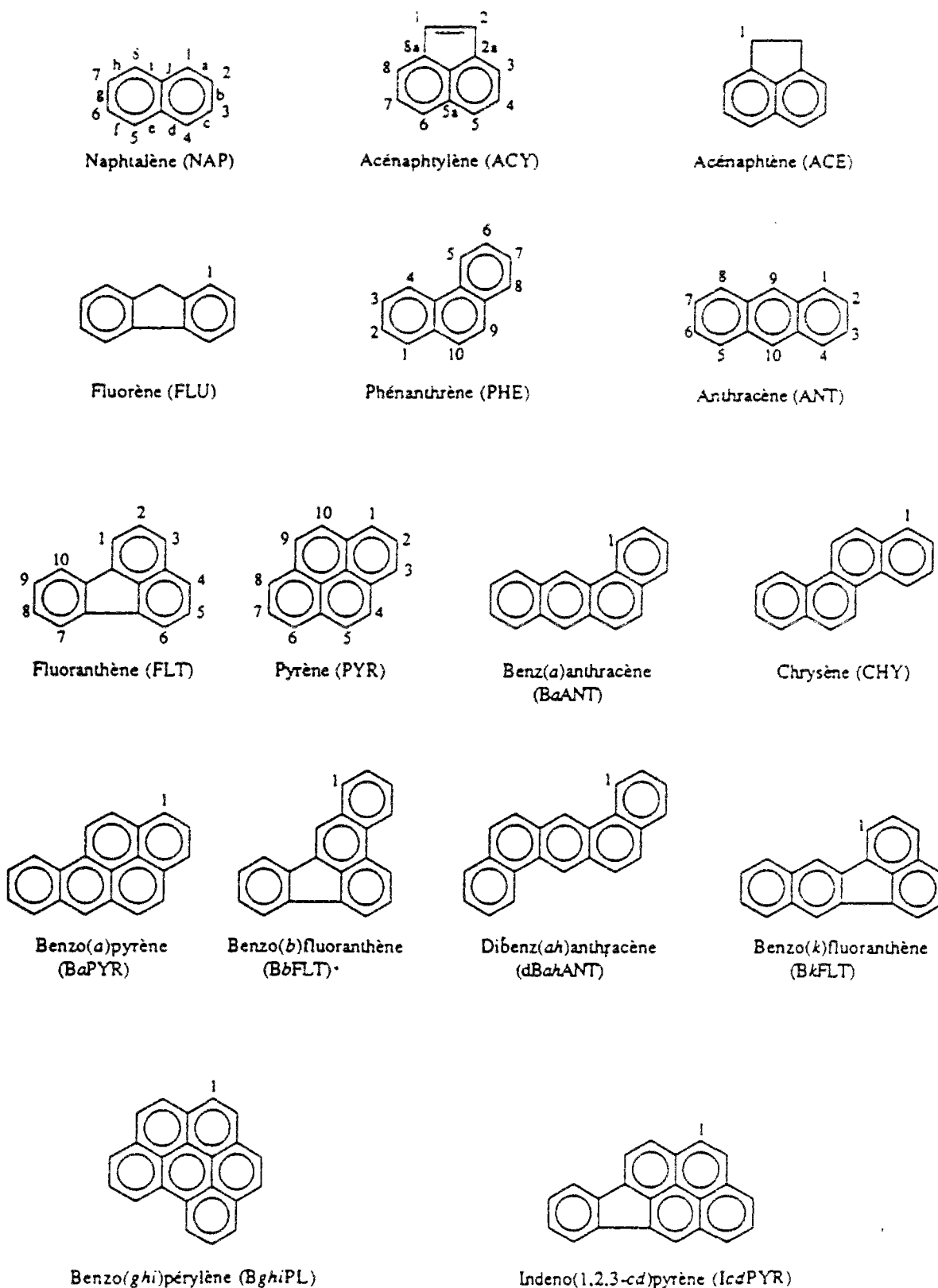


Figure I-4 : Représentation des structures chimiques des 16 HAP retenus par l'E.P.A.

Les propriétés physico-chimiques sont résumées sur le tableau I-5; on peut remarquer notamment une solubilité très faible de la plupart des composés qui décroît sensiblement quand le nombre de cycles aromatiques et la masse moléculaire croissent.

HAP	Nombre de cycles	Masse molaire (g.mol ⁻¹)	Solubilité dans l'eau (mg/l ⁻¹)
Naphtalène	2	128.2	32
Acénaphthylène	3	152.2	3.93
Acénaphtène	3	154.2	3.42
Fluorène	3	166.2	1.9
Phénanthrène	3	178.2	1.0
Anthracène	3	178.2	0.07
Fluoranthène	4	202	0.27
Pyrène	4	202	0.16
Chrysène	4	228.2	0.006
Benzo(a)anthracène	4	228.2	0.0057
Benzo(a) pyrène	5	252	0.0038
Benzo(b)fluoranthène	5	252	0.0012
Dibenzo(a,h)anthracène	5	278	0.0005
Indéno(1,2,3-cd)pyrène	5	276	0.062
Benzo(ghi)pérylène	6	276	0.00026

Tableau I-5 : Propriétés physico-chimiques des HAP.

1.3.4.4. Devenir des HAP

La contamination des eaux reste un problème important car ces composés peuvent être dangereux à des concentrations faibles et ils se dégradent lentement. D'autre part, il existe peu d'informations spécifiques sur le comportement de tels éléments dans le sous sol. Le problème de l'évolution de tels composés demeure complexe car les interactions entre phases liquides et solides régnant dans le sous sol, peuvent jouer un rôle important dans le devenir des polluants, en retardant leur migration (DZOMBACK, 1984; EPRI 1992; ABRIOLA et PINDER, 1985). C'est donc la localisation de tels polluants dans chacune des phases du sol qui conditionne les voies de dispersion et les risques de contamination (CHAPUIS, 1995). Pour les HAP, il semble que les teneurs des sols soient très dépendantes de la distance de la source de la contamination.

1.3.4.5. Toxicité de certains composés aromatiques rencontrés.

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques constituent une menace pour la santé de l'homme et son environnement par leur persistance, leurs propriétés toxiques, carcinogènes et mutagènes, bien qu'actuellement peu de documentation soit disponible sur une étude épidémiologique sur l'homme. Les récents travaux de Bouchez (1995), montrent qu'à part le cas particulier des hydrocarbures aromatiques monocycliques, les "pouvoirs mutagène et cancérogène apparaissent pour les HAP à partir de quatre cycles et sont particulièrement marqués pour les HAP à cinq et six cycles". Ces travaux cités ont montré une certaine corrélation entre la présence de ces composés dans l'environnement et des effets toxiques, sur plusieurs espèces bactériennes (BOUCHEZ, 1995).

D'autres part, des tests d'écotoxicologie ont été et sont actuellement en cours d'expérimentation dans un certain nombre de laboratoires (tests MICROTOX®, MUTATOX®, tests sur végétaux et sur Nématodes.). La toxicité des polluants susceptibles d'être rencontrés sur un site d'ancienne usine à gaz est aussi un des paramètres d'évaluation en terme de risque. Mais, il est remarquable, qu'à ce jour, aucune conséquence sur la santé humaine de l'existence des polluants rencontrés sur les sites d'anciennes usines à gaz n'ait été signalée en France. Il est important, en effet, de replacer le polluant dans son contexte, car même si un produit est particulièrement toxique, s'il se trouve à plusieurs mètres de profondeur, le risque sera beaucoup moins grand qu'un produit un peu moins toxique mais plus accessible, ceci bien entendu dans des conditions de milieu environnant "idéales" (friche, aucune utilisation future du site, pas de contamination de la nappe).

La toxicité d'un produit dépend, entre autres, de la quantité absorbée, de la durée d'exposition, et de la voie d'administration concernée.

La toxicité d'un produit se juge en distinguant :

- la toxicité aiguë qui représente la vitesse de destruction occasionnée des tissus supérieure à la vitesse de réparation ou d'adaptation des tissus);
- la toxicité chronique qui correspond à une exposition prolongée nécessaire pour occasionner des troubles.

La toxicité des divers produits de fabrication des usines à gaz est donnée dans le tableau I-6.

Produits	Toxicité
Ammoniaque	Toxicité aiguë irritant respiratoire oculaire et cutané
Cyanures libres	Toxicité fonction de leur capacité à libérer des ions CN^- Toxicité aiguë HCN(acide cyanidrique)→céphalées gène respiratoire (intoxication chronique) voire mort à forte dose Seuil de détection olfactif : 0.2-5ppm.
Métaux	Toxicité dépend de la nature du métal et de l'état chimique dans lequel il se trouve
Composés organiques volatiles (BTEX) BENZENE TOLUENE XYLENE PHENOLS	Céphalée asthénie à partir de 50ppm (inhalation) 20 000ppm (2% dans l'air) = mort (Fiche toxicologique INRSn°49) une inhalation chronique entraîne des troubles neuropsychiques... effet tératogène sur l'homme fétotoxique pour les animaux de laboratoire
	caustique à forte toxicité orale entraîne défaillance respiratoire et cardiaque par inhalation et ingestion par contact cutané dépendent des concentrations et durée de contact (seuil limite 0.5µg/l eaux souterraines (décret 89-3) pas cancérogène classification groupe 3 du CIRC
HAP	toxicités différentes selon les composés exemple : Benzo(a)pyrène considéré comme hautement nocif pour l'homme, un contact avec une solution à 1% a entraîné des hyperkératoses+cancer. Plafond d'exposition dans l'air (recommandation): $B(a)P=0.00015mg/m^3$ (Ministère Santé URSS 1973) $B(a)P=0.005mg/m^3$ (moyenne d'exposition Suède, 198) $HAP=0.2mg/m^3$ Mesure globale exposition aux HAP France ministère du travail (Fiche INRS n°144)

Tableau I-6 : Toxicité des différents sous produits de fabrication du gaz manufacturé.

Pour les HAP, le naphthalène n'apparaît ni cancérogène, ni mutagène tandis que le benzène par exemple, bien que non mutagène est cancérogène. Cet exemple, par la multitude des éléments à prendre en compte lors de l'approche de cette problématique, et par le manque d'études spécifiques sur la toxicité envers l'homme, montre que celle-ci reste difficilement appréciable.

En terme de bilan, en ce qui concerne les hydrocarbures aromatiques polycycliques volatils (BTEX, et secondairement naphthalène et phénols), les critères toxicologiques sont déterminants dans l'analyse de risque (DUMONT, 1994), dans la mesure où toute une population peut être atteinte (pourtours d'un ancien site); les conditions locales de météorologie étant à considérer.

En revanche, pour les HAP les moins volatils, le facteur de risque déterminant sera la possibilité de contact avec la cible (homme); l'étude de la toxicité devient alors pas très pertinente dans ce contexte, et c'est surtout l'utilisation future du sol qui détermine le niveau de risque.

Très souvent, les données disponibles ont été obtenues sur les animaux, et il est difficile de les extrapoler directement à l'homme. En particulier en ce qui concerne le pouvoir cancérigène, les preuves sur l'homme, données par des études épidémiologiques, sont souvent insuffisantes pour apporter une conclusion fondée.

Dans le cas des usines à gaz, les risques se situent aux niveaux chronique et cancérogénéité; la toxicité aiguë intervient essentiellement par inhalation lors de chantier (excavation) et peut être éventuellement par ingestion de terres polluées (par des enfants) lorsqu'elles sont accessibles.

I.3.5. Les traitements applicables aux anciens sites usines à gaz.

I.3.5.1. Le traitement thermique.

Le principe est de chauffer les matériaux pollués, soit à haute température, (il s'agira alors d'une incinération), soit à température plus basse, (on parlera de désorption), pour séparer les polluants eux-mêmes du sol. Les sols et les eaux peuvent être traités par ce procédé. (BENOIT, 1992).

I.3.5.2. Le pompage.

Cette méthode consiste à pomper les eaux polluées pour les traiter en surface (ex-situ) ou dans un centre spécialisé (hors site) (MACKAY et CHERRY, 1989).

I.3.5.3. Le lavage.

Le lavage consiste à favoriser le transfert des polluants vers une phase aqueuse qui est ensuite récupérée et traitée. Il peut se réaliser à l'eau ou avec des solvants spécifiques. Cette méthode convient au sol et éventuellement à des gravats souillés (en pré-traitement). Elle peut se réaliser ex-situ ou in-situ, par injection d'eau dans le sol et pompage de l'eau ayant dissous les polluants (HOLROYD et ADAMS, 1992; HORVAT, 1993).

I.3.5.4. Venting.

Cette méthode in situ consiste à aspirer la phase gazeuse du sol en zone non saturée pour traiter ensuite les gaz recueillis (BOERSMA et Al, 1993; BURMAN, 1993).

I.3.5.5. Stripping.

C'est une méthode in situ qui s'applique à la zone saturée du sol (nappe). Elle consiste à mettre l'eau polluée en contact avec de l'air propre ou de la vapeur (BACHAUSEN, 1990; BOLHER et Al, 1990). La phase gazeuse absorbe une partie des polluants volatils et est traitée en surface (BRUBAKER, 1993).

I.3.5.6. Le traitement biologique.

Ce mode de traitement apparaît comme une technologie innovante et naturelle (BENOIT, 1992; BURLE, 1992; BURLE et Al, 1993; LOEHR, 1993; DRUELLE, 1995), moins coûteuse que les autres traitements car nécessitant peu ou pas de transport, impliquant des technologies de mise en oeuvre relativement simples et s'appliquant à des pollutions diffuses sur de grands volumes de terres. Mais ce type de traitement, par son caractère récent, nécessite des recherches plus approfondies pour garantir et améliorer ses performances.

Le traitement biologique consiste à favoriser le développement de bactéries qui utilisent les polluants dans leur métabolisme. Il s'agit de fournir à ces bactéries les meilleures conditions pour leur développement. Pour cela, il faut donc leur apporter des nutriments (N, P), une température comprise entre 10 et 40°C, et maintenir un taux d'humidité compatible avec le développement bactérien.

S'agissant de terres contaminées, il faut éviter toute pollution supplémentaire du milieu environnant et donc isoler le système par un dispositif de membrane inférieure et de couverture imperméable de manière à contrôler l'environnement du traitement. L'air d'extraction est épuré sur des filtres à charbons actifs, et les eaux de lixiviation sont récupérées. Ce type de traitement est économique, mais nécessite du temps et de l'espace.

Trois types de traitement sont employés actuellement :

Le traitement en tas (biotertre) est effectué sur des terres triées, plus ou moins homogénéisées, disposées en talus ou en lagune de quelques mètres de hauteur (1 à 4m) représentant fréquemment de 5000 à 15 000 m³. La durée de traitement se mesure en années mais de faible coût ≈450FF/t).

Le traitement par "land farming" ou andains consiste à traiter les terres polluées disposées en couches d'épaisseur limitée d'environ 1m. La différence principale avec le terte biologique réside dans le fait que les terres sont remuées mécaniquement périodiquement, ce qui assure ainsi une bonne oxygénation.

Le traitement en bioréacteurs "slurry reactor" (boue avec 20 à 30% d'eau) ou "pan reactor" (traitement de la phase solide) demeurent encore des technologies expérimentales dans le cas des sols contaminés par les HAP. Les sols sont traités sous formes de boues épaisses (slurry). Une agitation mécanique est assurée, le fait que le milieu soit confiné dans le réacteur permet de contrôler et d'optimiser de manière efficace certains paramètres physiques (pH, température, ensemencement, agitation...).

1.3.5.7. Le confinement et la stabilisation.

Ces techniques ne sont pas des techniques de dépollution à proprement parler, elles consistent à piéger des polluants et à les isoler (CARTWRIGHT et HENSEL, 1993).

Le confinement peut être réalisé par la mise en place de barrières physiques étanches (en béton ou géomembranes) autour de la zone de sol contaminée à isoler et des eaux souterraines (RISLER, 1993).

Il peut aussi s'agir d'installer une barrière hydraulique, c'est à dire qu'à l'aide de pompages judicieusement situés, le niveau de la nappe au droit d'un site pollué est abaissé, afin d'éviter son contact avec les polluants et la diffusion de ceux-ci par voie aqueuse souterraine.

La stabilisation / solidification consiste à mélanger le sol avec des réactifs (ciment, silicates...) afin d'obtenir un matériau stable qui piège les polluants (GOUVENOT, 1993); cependant, le procédé est limité par la profondeur à traiter et la maîtrise de l'évolution des polluants à long terme reste encore incertaine.

Une synthèse des différents types de traitements de dépollution utilisables dans le cas de la réhabilitation des sites industriels d'anciennes usines à gaz peut être réalisée sur le tableau I-7:

	Thermique	Lavage	Biologique	Mise en décharge	Venting Stripping	Physico- chimique	Confinement
Goudrons	♦						
Gravats	♦	♦		♦			
Matières épurantes	♦			♦			♦
Sols	♦	♦	♦	♦	♦		♦
Eaux de cuves	♦		♦			♦	
Eaux de nappe			♦		♦	♦	

Tableau I-7 : Synthèse des différents types de traitements de dépollution envisageables.

I.4. Mécanismes généraux de la migration des hydrocarbures dans les sols.

Les goudrons sont parmi les principaux produits présents sur les sites d'anciennes usines à gaz. Ils sont constitués essentiellement de brai (asphalte et charbon) et d'huiles lourdes; leur composition, et leur viscosité, varient beaucoup entre les usines (surtout à cause des différents procédés de fabrication) et au cours du temps (vieillesse physique, chimique et biochimique). De nombreuses études ont déjà été réalisées sur la problématique de la migration d'hydrocarbures dans les sols. Les travaux de SCHWILLE (1988), ZILLIOX et MUNTZER (1971); ARNAUD et Al (1993); CLARKE et Al (1994); MACKAY et C45

HERRY (1989); PARKER et Al (1994); PYKA (1993) POWERS et Al (1991) E.P.R.I (1992) servent de références pour la compréhension du phénomène.

Les risques encourus au niveau pollution sont représentés d'une part, par la pollution du sol proprement dite, et d'autre part, par le transferts de contamination à travers le sol, via un mode de transport (gaz, eau) vers une zone cible : la nappe phréatique. Par exemples, les scénarios possibles de migration des goudrons dans les sols peuvent être évoqués en considérant la configuration hydrogéologique des sites d'anciennes usines à gaz. Dans la majorité des cas, les usines à gaz ont été implantées sur des sites au relief peu accidenté, généralement à proximité ou dans des zones urbaines, proches de voies de communications et d'apports importants d'eau. Ces conditions se trouvent réalisées sur des plaines alluviales, le long des cours d'eau.

Nous allons essayer de comprendre comment ces hydrocarbures peuvent s'immiscer dans le sol, d'abord au travers de l'approche de la migration des hydrocarbures pétroliers, largement étudiée, puis, nous nous ramènerons au cas des usines à gaz et des goudrons de houille.

Les études qui ont été réalisées sur la migration des produits pétroliers dans les sols peuvent être considérées comme des premières approches pour la compréhension des phénomènes d'infiltrations de goudrons de houille, qui sont chimiquement proches des hydrocarbures pétroliers (HAP, benzène...), mais qui possèdent des caractéristiques cependant différentes. Les goudrons présentent notamment des viscosités plus élevées et des densités supérieures à celle de l'eau ($d=1.2$).

Une différenciation est effectuée par de nombreux auteurs dans ces liquides non miscibles à l'eau, nommés généralement dans la littérature anglo-saxonne NAPL (non aqueous phase liquid), ainsi ils distinguent :

- les liquides dits plus "denses" que l'eau appelés DNAPL (dense non aqueous phase liquid) tels que les solvants chlorés, les huiles lourdes et les goudrons de houille;
- et les liquides LNAPL (light non aqueous phase liquid), tels que les produits pétroliers considérés comme moins denses que l'eau (essence, supercarburants...).

I.4.1. Aspects qualitatifs, création et nature de la source de contamination.

A l'échelle de l'aquifère, la surface de contact entre l'eau de la nappe et le contaminant peut être considérée comme un plan.

I.4.1.1. Migration verticale seule, où les hydrocarbures n'atteignent pas la nappe. Formation du corps d'imprégnation.

La migration des produits non miscibles (NAPL) dans le sol est un processus complexe. Le schéma classique d'une migration est commenté de la manière suivante :

à partir d'un point de fuite ou d'un épandage, le produit pétrolier (au sens large du terme) déversé à la surface du sol tend tout de suite à s'étaler et à s'écouler tout en imprégnant la couche superficielle du sol. Par gravité, les hydrocarbures migrent d'abord vers le bas, dans la zone non saturée entre le point de fuite et le toit de la nappe phréatique.

Au cours de cette migration, ils ont tendance à être retenu par le terrain dans des proportions variables selon la nature du produit (LNAPL ou DNAPL) et les propriétés du sol (nature, perméabilité...). Si la quantité de produit déversée est inférieure à la capacité de rétention du domaine d'infiltration verticale situé au dessus de la nappe (volume d'huile retenu/volume de sol traversé), l'huile reste suspendue dans la zone non saturée sans atteindre le toit de la nappe. Il se forme un corps d'imprégnation d'huile, dont les contours se stabilisent en fonction du temps, jusqu'à ce que la saturation en huile atteigne un seuil appelé "rétention primaire".

Ce corps d'imprégnation reste immobile dès qu'une position d'équilibre est atteinte sous l'effet des forces capillaires et présente des contours et des formes irrégulières dues aux hétérogénéités du sous sol. Ces hétérogénéités traduisent des perméabilités différentielles aux différents fluides (huile, eau, air), de même que des variabilités des degrés de saturation le long du trajet d'écoulement.

Cette première phase d'écoulement peut s'interrompre de trois manières :

- 1/ La zone non saturée en eau retient la totalité des hydrocarbures qui ont pénétré dans le sous sol.
- 2/ L'huile atteint le niveau de la nappe phréatique.
- 3/ L'huile atteint un substrat imperméable.

Une représentation possible des phénomènes est illustrée en figure I-5.

I.4.1.2. Migration verticale jusqu'à la frange capillaire.

A contrario, si avant de prendre cette position d'équilibre, l'huile peut atteindre la frange capillaire de la nappe située à faible profondeur, et si la capacité de rétention du sol est simplement dépassée par la quantité déversée, elle s'étale en une sorte de "galette" sur le toit de la nappe en pénétrant la zone saturée en eau.

A ce stade, du fait de la présence de la colonne d'huile qui surmonte la surface de contact eau-huile, celle-ci a tendance à s'enfoncer sous la surface piézométrique, mais ce phénomène n'est que temporaire, car à cause de l'écoulement latéral, la pression diminue, et par ce rééquilibrage, le fluide remonte à la surface de la nappe, conformément aux densités respectives des hydrocarbures (LNAPL) et de l'eau.

Cette "galette" s'allonge ensuite préférentiellement en aval de l'écoulement d'eau. L'infiltration continue, tant que le sol n'a pas absorbé la totalité du polluant. Cette condition réalisée, le sol

pollué atteint le seuil de saturation résiduel et l'hydrocarbure un "stade immobile". Les dimensions définitives de la "galette" sont généralement atteintes après 24 ou 48 heures.

Cette phase huile étant sujette aux fluctuations du niveau piézométrique (zone de battement de nappe), une certaine quantité de produit à saturation résiduelle peut être piégée de cette manière sous le toit de la nappe. Il s'agit d'une partie qui peut être remise en mouvement. Cette phase remobilisée peut se déplacer sur des distances plus ou moins longues.

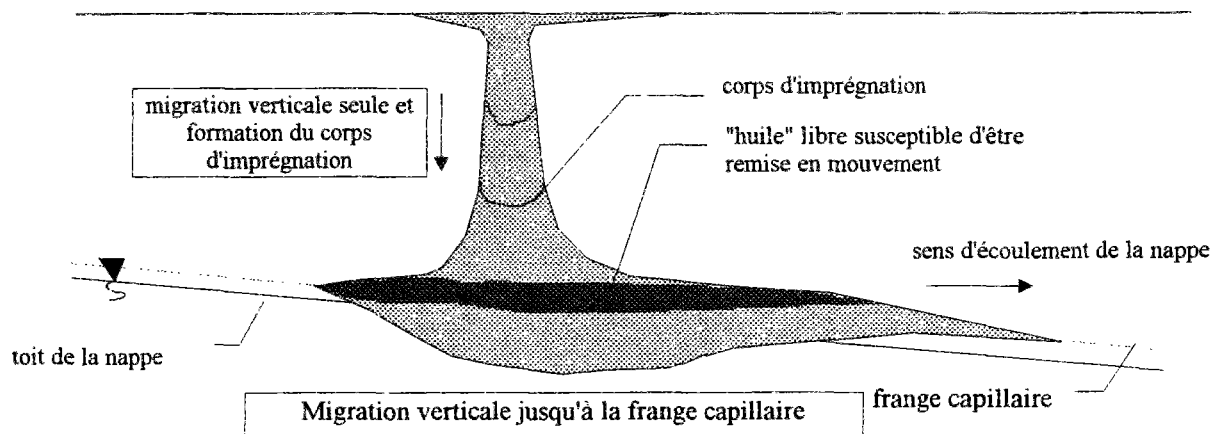


Figure I-5 : Mécanismes de migration d'un produit pétrolier au toit de la nappe dans un terrain homogène.

I.4.2. Transfert des hydrocarbures mis en solution dans l'eau souterraine.

Dans la zone saturée, la migration d'un hydrocarbure de densité supérieure à 1 sera gouvernée par sa pression capillaire. Deux phénomènes seront susceptibles de stopper la migration verticale d'un tel produit : la réduction de la taille des pores et l'augmentation de la pression hydrostatique. La résultante de ces phénomènes est l'individualisation du corps d'imprégnation comprenant des zones résiduelles (le contaminant est retenu à concurrence de la capacité de rétention du sol) et des zones d'accumulation (le polluant remplit la quasi totalité des espaces intra-granulaires).

Si les produits pétroliers et les hydrocarbures issus de la fabrication du gaz, peuvent être considérés comme fluides non miscibles à l'eau, il existe néanmoins une faible solubilité de leurs composants dans l'eau. C'est, le transfert de ces parties solubles qui constitue la composante principale d'une source de pollution souterraine, notamment dans la notion de risque de contamination de l'environnement et in fine de la chaîne alimentaire.

Ce transfert peut se réaliser de deux manières, soit par percolation d'eau de pluie à travers et en périphérie du corps d'imprégnation, soit par mise en contact direct de la phase polluante avec la nappe d'eau souterraine (cas fréquent dans le cas d'anciennes installations d'usines à gaz, où les cuves et réservoirs souterrains sont enterrés, et parfois proches du toit de la nappe voire même au contact de celle-ci).

Dans le cas où les hydrocarbures n'atteignent pas la nappe phréatique, il peut tout de même y avoir pollution. Les hydrocarbures aromatiques sont dans ce cas susceptibles d'être lessivés par les eaux d'infiltration et, par transfert, susceptibles de contaminer la nappe.

Par contre, si le polluant se trouve en zone de battement de nappe, il y a une contamination continue de l'eau par les hydrocarbures aromatiques. Ce cas de figure peut présenter un caractère plus nocif en raison du relargage continu des polluants et des conditions en général plus favorables à une pollution. Cet étroit contact entre l'eau et les hydrocarbures favorise la mise en

circulation de certains composés solubles. Les composés légers, très volatiles et normalement facilement biodégradables, sont relativement solubles, alors que les composés plus lourds le sont moins.

I.4.3. Les panaches d'hydrocarbures

Quelques exemples de panaches organiques ont largement été étudiés depuis des années, notamment aux USA et au Canada. Il en ressort que les panaches de polluants peuvent contaminer le sous sol sur plusieurs kilomètres ou plus suivant la nature du sous sol, granulaire, sableux, rocheux fracturé, en fait suivant les variabilités latérales et verticales de faciès.

Des variabilités de composition ont été trouvées dans l'eau des aquifères. La liste importante des produits utilisés, la dissolution des hydrocarbures dans les sols, et leur transport subséquent par l'eau conduisent à générer de nombreux panaches de polluants. Il n'est alors pas impossible de trouver sur un même lieu plusieurs types de contamination du sous sol et de l'eau.

D'autre part, il a été clairement établi qu'un contaminant présent dans un aquifère ne peut pas être apprécié juste par l'étendue de son panache. De grands panaches de polluants sont parfois détenteurs de concentrations non négligeables, mais faibles, alors que des panaches d'étendues plus faibles, peuvent contenir des polluants en concentrations plus élevées et plus dangereuses pour la santé. Ceci est principalement dû à la solubilité différentielle des polluants.

I.5. Etudes spécifiques aux goudrons de houille

Les recherches qui se réfèrent aux infiltrations de goudrons de houille permettent de constater à la fois un certain nombre de similitudes et de différences avec les produits pétroliers. Les études décrites ci-dessus apportent des renseignements quant aux infiltrations après des épanchements de surface. Par contre elles renseignent mal dans le cas de fuite de cuves où les conditions d'infiltrations sont différentes du fait de la faible surface d'imprégnation, et de la pression exercée par la charge due à la hauteur de polluant dans le réservoir, des différences de caractères physico-chimiques des polluants.

I.5.1. Configurations d'infiltration des goudrons.

Différents types de configuration ont été mis en évidence à partir d'études réalisées sur certains sites d'usines à gaz de GDF (N'GUYEN, 1994).

I.5.1.1. Sol perméable - quantité de goudron faible - milieu non saturé

L'infiltration aura le même comportement que celui décrit dans le paragraphe I.4.1.1. Le goudron atteint le "stade immobile". La principale différence est la forme que prend le corps d'imprégnation car il emprunte ici plus de chemins préférentiels. La viscosité du goudron accentue les phénomènes dus aux hétérogénéités du sous sol. Le goudron, en raison de sa viscosité élevée, et en fonction du temps de contact avec l'air du sol qui l'oxyde et évapore ses composants les plus volatils, risque de raidir et "d'imperméabiliser" le sol au fur et à mesure de son écoulement et ainsi de modifier continuellement sa trajectoire.

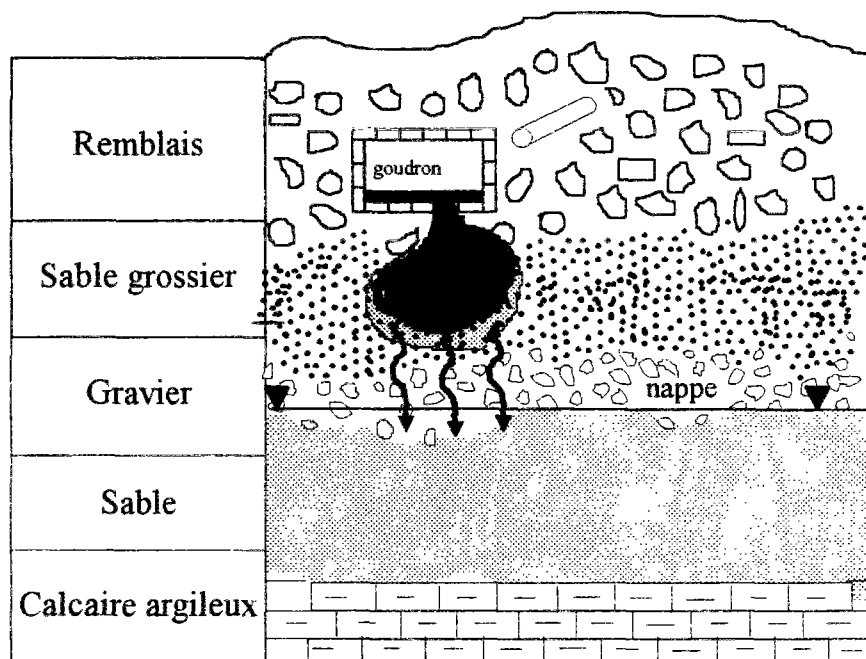


Figure I-6 : Exemple de migration : la nappe n'est pas atteinte par le goudron

Si le goudron n'a pas migré jusqu'à la nappe, celle-ci n'est pas totalement protégée pour autant. En effet, certains produits sont solubles et peuvent être emportés par lixiviation. On peut retrouver ainsi des HAP légers et des BTEX dans l'eau alors que la zone goudroneuse est restée bien au-dessus.

1.5.1.2. Sol perméable - quantité de goudron importante - milieu non saturé :

L'infiltration aura le même comportement que précédemment, par écoulement gravitaire, jusqu'à ce qu'elle atteigne un substrat imperméable ou la nappe phréatique .

1.5.1.3. Sol perméable - quantité de goudron importante - substrat imperméable

Si la nappe est captive et protégée par une couche d'argile imperméable, le goudron s'infiltre verticalement jusqu'à cette couche, puis horizontalement en "galette". Il a été observé que dans le cas où le goudron dispose de chemins préférentiels pour pénétrer la partie supérieure de l'argile (trous de vers ...), il peut l'imprégner totalement par migration latérale. Ce phénomène nécessite néanmoins une quantité de goudron importante, et une forte charge .

1.5.1.4. Sol perméable - quantité de goudron importante - nappe phréatique :

Dans le cas où le goudron atteint la nappe, la constitution d'une "galette" dans la frange capillaire ne se fait pas. Le goudron ayant une densité supérieure à celle de l'eau ($d=1.2$), il continue à s'infiltrer jusqu'à ce qu'il atteigne le stade "immobile" ou jusqu'à rencontrer une couche imperméable, à la base de la nappe. De même, la "galette" qui se forme alors, s'allonge préférentiellement dans le sens de l'écoulement.

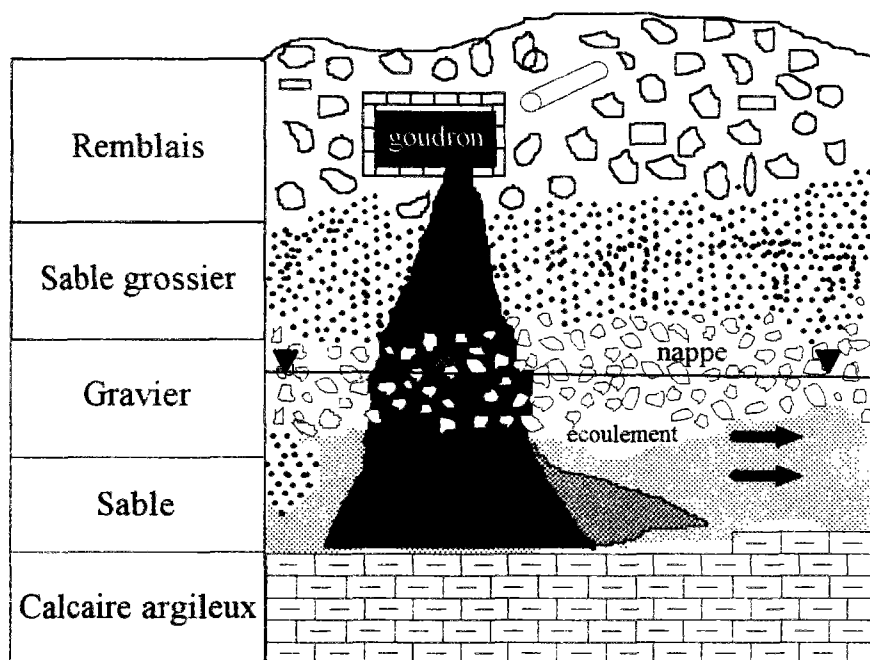


Figure I-7 : Exemple de migration : la nappe est atteinte par le goudron.

Ces cas simples qui viennent d'être décrits, ne doivent pas cacher une réalité souvent beaucoup plus complexe. En effet les écoulements de fluides visqueux sont dépendants de leurs propres propriétés, de leurs dispositions initiales dans le sol, mais aussi et surtout de la complexité géologique du sous sol dans lequel ils s'infiltrent.

1.5.1.5. Effets de la complexité géologique.

Les aquifères sableux ou graveleux ont souvent dans (ou sous) leur structure des bancs ou des couches d'argiles ou de matériaux silteux. Ces strates ou lentilles, sont moins perméables que le reste de l'aquifère. Le flux de la nappe et le sens du courant sont alors perturbés par la présence de ces strates de perméabilité moindre. De plus, les sources de NAPL dans le sous sol sont difficiles à localiser car le volume relargé est, le plus souvent, inconnu (latence des phénomènes). La dispersion des polluants dans le sous sol dépend alors des caractéristiques mêmes de ces derniers (solubilités différentes des composés), de la complexité géologique du milieu, et de sa nature minéralogique.

Dans les exemples que nous avons décrits, nous n'avons pas pris en compte la masse de contaminants qui peut être absorbée dans le milieu aquifère en contact, qui risque d'être du même ordre, voir même plus important, que la phase dissoute.

En fonction de ces divers paramètres, les polluants dissous dans le sous sol vont migrer plus rapidement dans les zones à forte perméabilité que dans celles à perméabilité moindre. Au fil des années, voire des décennies, cette invasion du milieu peut entraîner les polluants très loin dans l'espace poreux et le panache d'éléments polluants investira aussi les zones à faible perméabilité.

De nombreux travaux de laboratoire ont permis d'évaluer la quantité d'hydrocarbures solubilisée en milieu saturé. Mais l'étude de la migration et de la solubilisation des goudrons de houille se heurte à de nombreux problèmes dûs essentiellement à l'extrême complexité de la composition de ces derniers, qui sont constitués de centaines de composés chimiques (cf. annexe ...)

Du point de vue dispersion de la pollution dans le sous sol, il est important de noter que la définition du panache de pollution est fortement liée à un aspect normatif fixant les limites d'une pollution. En effet, l'importance des surfaces généralement concernées incite plus à définir une limite externe de pollution en terme de risque, par rapport à une concentration de contaminant qu'en terme d'absence de contamination mesurable.

Ce chapitre montre combien il peut être complexe de comprendre, voire de modéliser le devenir d'un contaminant infiltré dans le sol. Cette complexité est liée à la multiplicité des paramètres à prendre en compte.

C'est à partir de cette problématique qu'il nous est apparu essentiel de caractériser, en laboratoire, un type de contamination du sous sol par des hydrocarbures issus de la pyrolyse de la houille.

CHAPITRE II

IDENTIFICATION DES TERRES POLLUEES PAR DES HYDROCARBURES ISSUS DE LA PYROLYSE DE LA HOUILLE

II.1. Granulométrie et séchage des sols pollués par des goudrons de houille.

II.1.1. Préparation des échantillons de terre.

Lors des prélèvements, les matériaux ont subi le même type d'homogénéisation sur site à l'aide d'engins mécaniques de chantier. A chaque campagne d'échantillonnage, une tonne de matériau fut excavée et distribuée en fûts plastiques de 100 litres. Une deuxième homogénéisation a lieu ensuite dans le laboratoire, sur une aire de travail avant de reconditionner le matériau dans les fûts en plastiques étanches. Seuls diffèrent dans cette prise d'échantillon, les lieux d'extraction.

La concentration en hydrocarbures dans le sol peut fortement varier selon la fraction granulométrique considérée. De ce fait, un fractionnement granulométrique devient essentiel pour réaliser l'identification du matériau, et cet essai granulométrique doit toujours s'opérer dans les mêmes conditions; l'élaboration d'un mode opératoire fut la première étape de notre étude.

II.1.2. Essais granulométriques d'identification.

Trois caractérisations par essais granulométriques ont été effectués. Lors des premiers essais d'analyse granulométrique, plusieurs difficultés furent mises en évidences :

Essai granulométrique normal :

Dans un premier temps, la nature agglomérée du matériau ne permettait pas de réaliser, à la teneur en eau "naturelle" de l'échantillon préparé, une granulométrie représentative. En effet, la nature du matériau, formé de goudron et de sable, lorsque soumis à la vibration d'une tamiseuse, entraîna un colmatage quasi instantané des mailles des tamis, formant ainsi une couche compacte de type "galette" par agglomération et collage des particules du sol contaminé.

Essai granulométrique par voie sèche :

Nous avons effectué ensuite, sur un échantillon de sol séché à 105°C pendant 4 heures, une granulométrie classique par voie sèche selon la norme AFNOR P18-304. Nous avons constaté alors que l'échantillon était sensible à la vibration puisque les particules agglomérées furent fragilisées et cassées par le criblage mécanique induit lors de la réalisation de l'essai. De plus, l'émission de poussières fut importante.

Essai granulométrique par voie humide :

Au vu de ces essais préliminaires, une analyse granulométrique par voie humide fut réalisée et l'élaboration d'un protocole d'essai, mis au point. C'est ce mode opératoire, consigné en annexe 1, qui fut utilisé pour chaque fractionnement granulométrique réalisé tout au long de notre étude. Les résultats des premiers essais préliminaires de tamisage figurent dans le tableau II-1, et la figure II-1.

Granulométrie	% de passant cumulé		
	échantillon brut	échantillon séché à 105°C	voie humide
20-40	100	100	100
10-20	100	94.5	98.76
5-10	97.41	82.56	94.04
2.5-5	24.54	62.02	80.66
1.25-2.5	4.31	38.09	64.55
0.63-1.25	0.17	22.06	53.86
0.315-0.63	0.01	13.85	46.84
0.16-0.315	0.01	6.8	31.99
0.08-0.16	0	1.72	16.13
0.04-0.08	0	0.77	12.84
<0.04	0	0.07	9.47

Tableau II-1 : Résultats des essais préliminaires d'identification par tamisages granulométriques du sable S1

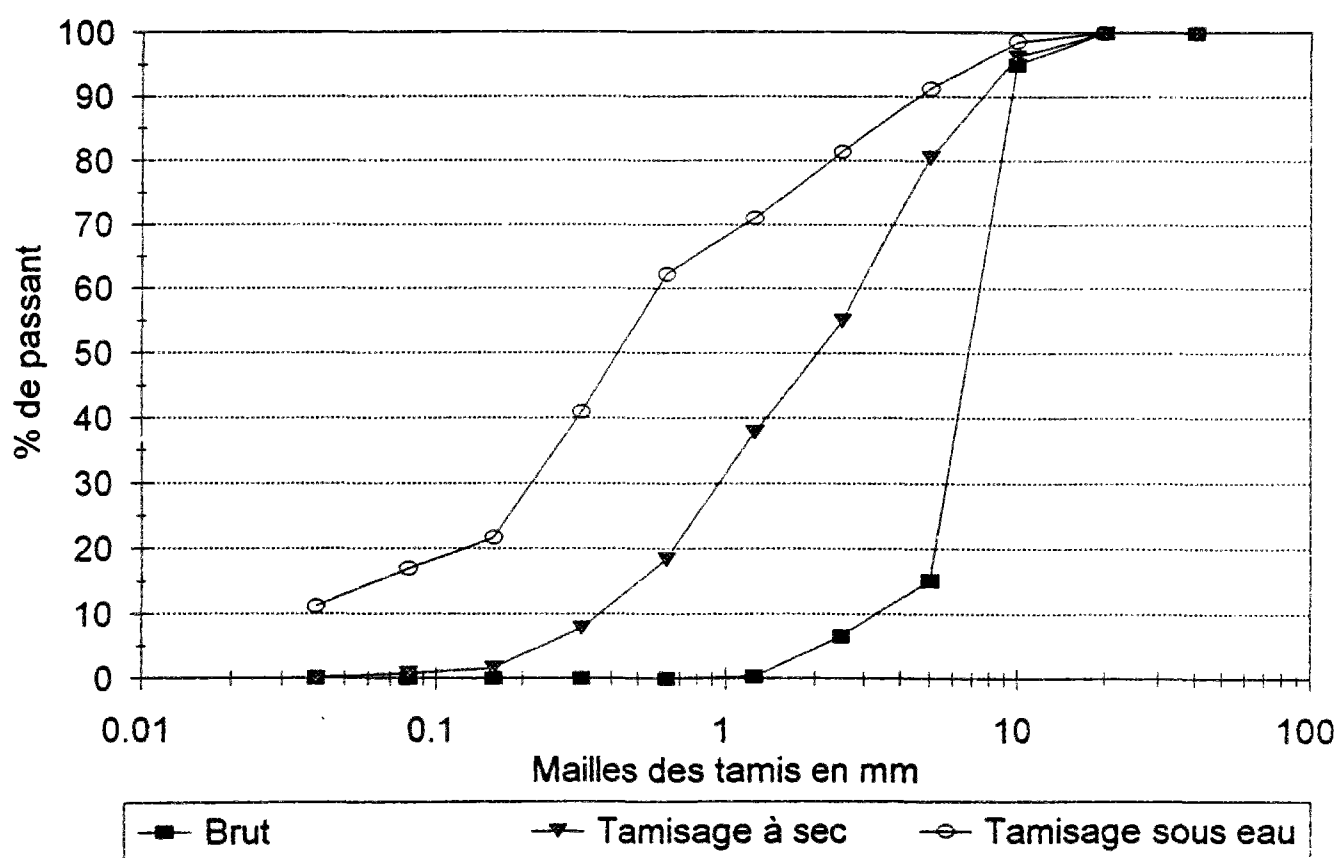
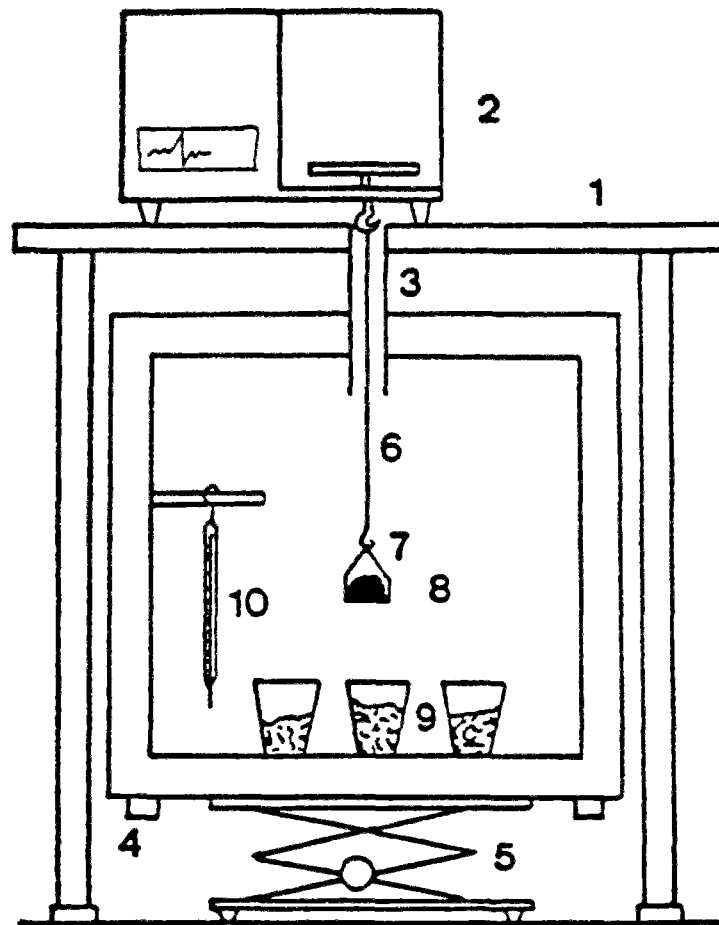


Figure II-1: Courbes granulométriques des essais préliminaires d'identification du sable pollué S1

II.1.3. Détermination des températures de séchage des sols pollués par des goudrons

II.1.3.1. Dispositif expérimental

La température de séchage fut établie expérimentalement à l'aide du dispositif schématisé figure II-2.



- | | |
|--|--|
| 1- table | 6- tige reliant la balance et la nacelle |
| 2- balance précise au 1/10 de mg couplée à un enregistreur | 7- nacelle |
| 3- tube en plastique | 8- échantillon |
| 4- étuve réglable | 9- gel de silice |
| 5- support élévateur "BOY" | 10- thermomètre |

Figure II-2 : Dispositif de détermination des températures de séchage, d'après LECA, 1990.

L'ensemble comprenant une nacelle et un filin suspendu à un crochet est relié au plateau d'une balance de précision. La nacelle est placée dans une étuve dont la température est réglable jusqu'à 105°C et dont le fond est tapissé de gel de silice.

Une quantité de matériau homogénéisé d'environ 2 kg est placée dans un bac fermé, étanche. Pour chaque détermination effectuée, un échantillon de terre contaminée fut prélevé puis placé dans la nacelle. La saisie des données a été effectuée toutes les minutes à l'aide d'un enregistreur automatique. Il a été possible de tracer une courbe de séchage exprimée en fonction du temps.

II.1.4. Résultats obtenus :

Les résultats obtenus sont schématisés figure II-3 :

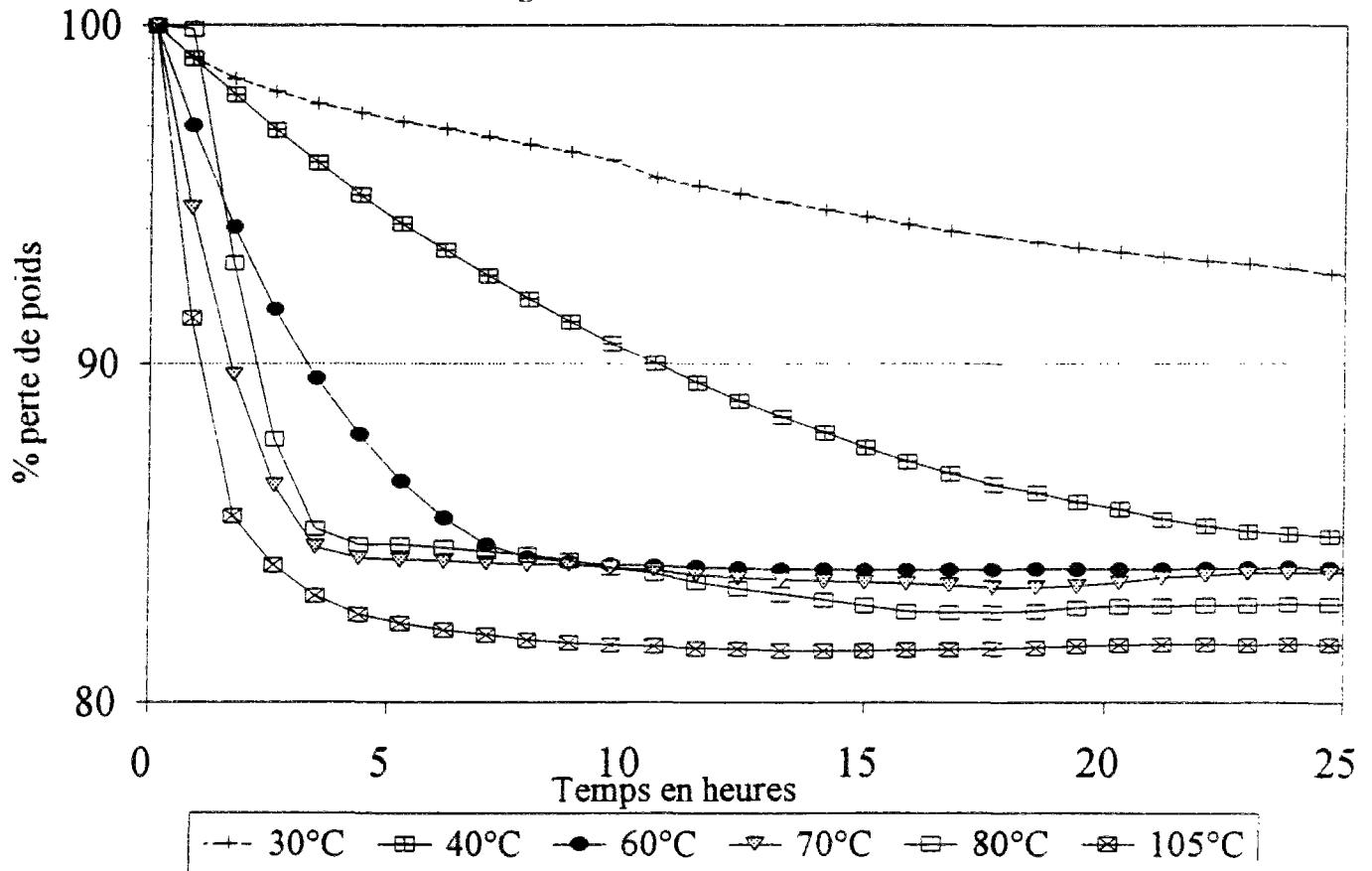


Figure II-3 : Courbes de séchage des échantillons de sol S1.

II.1.5. Interprétation des courbes de séchage.

Les courbes de séchage se décomposent en deux parties : la première est caractérisée par un segment de droite ayant une pente négative; une rupture est ensuite constatée au bout d'un temps t , que l'on détermine par extrapolation de droites sur le graphique; on atteint ensuite un plateau attribué à l'échantillon sec.

La première partie de la courbe témoigne d'une évaporation intense qui correspond, pour les températures inférieures à 70°C, à l'évaporation de la pellicule d'eau superficielle recouvrant l'échantillon et, éventuellement, de l'eau interne ayant migré en phase liquide vers la surface, à mesure du séchage.

La deuxième partie de la courbe correspond à l'expulsion probable de la couche d'eau pelliculaire liée aux particules de goudrons, au transfert de l'eau en phase vapeur, de l'intérieur vers l'extérieur des agrégats.

II.1.6. Conclusion.

Afin de caractériser le matériau par la méthode des pertes au feu décrite dans le paragraphe suivant, il nous a paru nécessaire de déterminer la température optimale de séchage de nos échantillons après fractionnement granulométrique par voie humide. Pour ne pas dénaturer l'échantillon, la température de séchage fut fixée par la méthode des pesées, à 60°C jusqu'à poids constant.

Au vu des courbes représentées en figure II-3, 60°C fut la température de séchage à l'étuve choisie pour éviter tout phénomène de début de perte de matière hydrocarbonée par évaporation, pouvant fausser nos résultats de caractérisation quantitative de la pollution par perte au feu, qui sont exposés dans les paragraphes suivants.

Les caractéristiques de nos essais préliminaires et les problèmes rencontrés peuvent être résumés sur le tableau II-2.

	Avantages	Inconvénients
Voie naturelle (direct)	Aucun	Colmatage instantané
Voie sèche	Mise en oeuvre facile. Fraction fine recueillie technique normalisée	Destruction microflore Emission de poussières, toxiques par inhalation
Voie humide mode opératoire CGI	Conservation microflore Caractérisation géologique Fraction fine complète Technique adaptée Résultats complets	Temps de mise en oeuvre long (séchage) Lessivage important

Tableau II-2 : Caractéristiques des essais d'identification granulométriques

II.2. Caractérisation quantitative de la pollution hydrocarbonée totale d'un sol pollué par des goudrons de houille.

II.2.1. Introduction.

Pour déterminer la charge organique d'un sol, deux méthodes peuvent être utilisées : la perte au feu, et le Rock Eval. La première méthode a été développée par le Centre de Géologie de l'Ingénieur dans le cadre de notre recherche pour caractériser quantitativement la charge globale en contaminants hydrocarbonés du sol S.

La seconde, issue de l'industrie pétrolière, est utilisée par l'Institut Français du Pétrole afin de déterminer les indices bitumineux pour la prospection pétrolière et fait actuellement l'objet d'une évaluation pour être utilisée lors de la caractérisation des sols contaminés au sein de l'I.F.P. La matière organique y est quantifiée par un détecteur type F.I.D qui permet de s'affranchir d'une éventuelle décarbonatation. On peut ainsi identifier trois types de composés : - ceux qui sont volatilisables, - ceux qui subissent un "cracking" et ceux combustibles.

II.2.2. Observations à la loupe binoculaire de l'échantillon S.

L'approche visuelle de la répartition de la pollution et de la nature des échantillons "S" observés après tamisage par voie humide et séchage à 60°C, fut obtenue grâce à une table d'identification avec laquelle nous quantifions globalement la répartition des polluants au sein des fractions granulométriques, par rapport à la surface du champs d'observation de la loupe suivant les modèles illustrés sur la figure II-4.

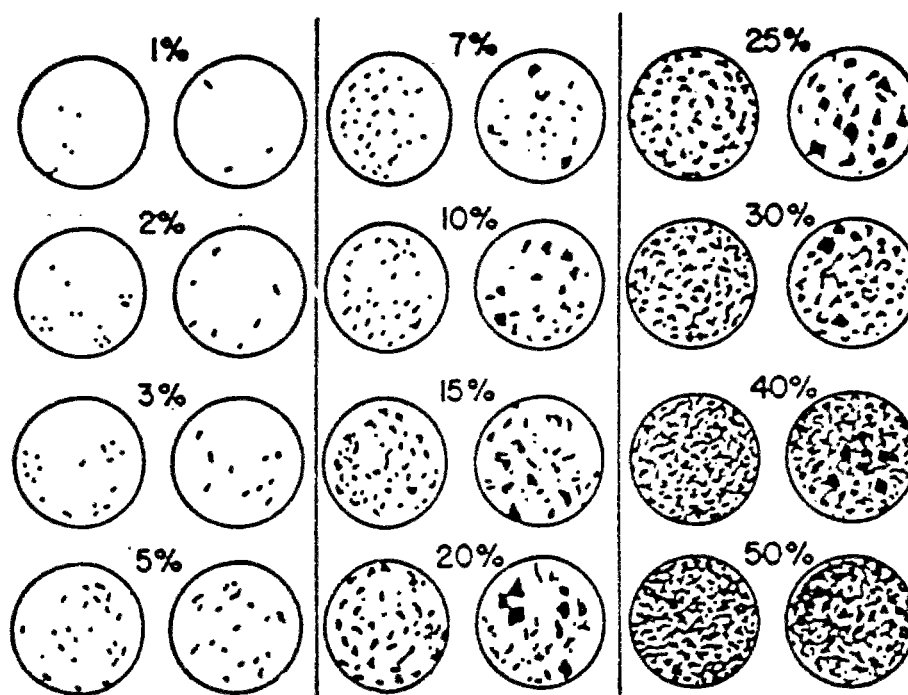


Figure II-4 : Planche d'identification visuelle des échantillons à la binoculaire

Ces observations des différentes fractions granulométriques montrent l'existence d'une phase noire hydrocarbure, collée aux grains minéraux ou les collant entre eux.

Le matériau S est un sable marin quartzeux contenant quelques débris coquilliers calcaires. Les débris coquilliers, très minoritaires présentent la particularité de n'être que très peu atteints par la pollution. Celle-ci s'y localise dans les irrégularités de surfaces et sont ainsi clairement discernables et bien individualisées.

L'essentiel de la pollution est rassemblée dans ces agrégats de différentes formes. On peut y distinguer, après avoir brisé les agrégats à l'aide d'une spatule :

- d'une part, des "boules" noires, de formes arrondies, constituées de matières organiques (polluant = goudron) jouant le rôle de "pâte" ou matrice, et de particules sableuses agglomérées ou enrobées dans cette matrice.

- d'autre part, des agrégats de type "noyau", qui sont constitués d'un noyau d'hydrocarbure apparemment presque "pur" et compact, autour duquel viennent s'agglomérer les éléments minéraux sableux bien visibles et souvent assez propres.

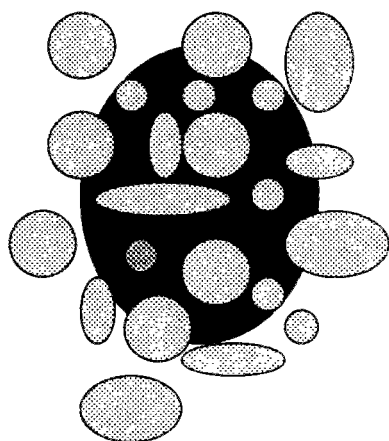
Pour l'essentiel, la pollution semble être localisée dans les agrégats, sans pour autant que celle liée à la surface des débris coquilliers individualisés puisse être considérée comme négligeable.

On retrouve cette distinction aux niveaux des observations pour toutes les fractions granulométriques jusqu'à 40 microns. Pour l'inférieur à 40 microns, les petites particules individualisées, apparemment majoritaires, paraissent grises, et sont mélangées à des petits agrégats noirs ou gouttelettes de goudrons pur. Mais on atteint là le seuil de pouvoir séparateur efficace de la binoculaire.

Ces observations faites sur les échantillons du sol S vont dans le même sens que celles effectuées lors de précédents travaux réalisés sur des sols contaminés d'anciennes usines à gaz (E.P.R.I, 1992; POWERS et Al, 1991; ABRIOLA et PINDER, 1985).

Ainsi, des agrégats de formes plus ou moins arrondies ont été observés; ils sont constitués de goudrons jouant le rôle de colle agglomérant les particules du sol. Leur schématisation peut être faite d'après nos observations réalisées à la binoculaire (figures II-5, II-6, II-7, II-8).

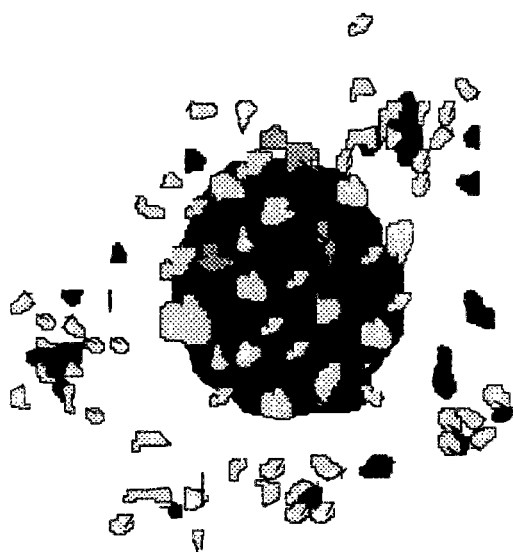
ABRIOLA et PINDER (1985) pour d'autres aspects d'agrégation, ont donné une interprétation des différentes formes de ces agrégats. Il s'agirait de la résultante de la migration des goudrons dans la matrice poreuse, où ces derniers prendraient la forme des macro et micro pores dans lesquels ils se sont infiltrés, en prenant leur forme par rigidification durant leur vieillissement au cours du temps (LUTHY et Al, 1993). Néanmoins, l'agglomération des éléments les plus grossiers a pu aussi être favorisée lors des différentes phases d'homogénéisation de l'échantillon sur le site, et en laboratoire (mélangeur rotatif) lorsque le goudron est pâteux ou visqueux.



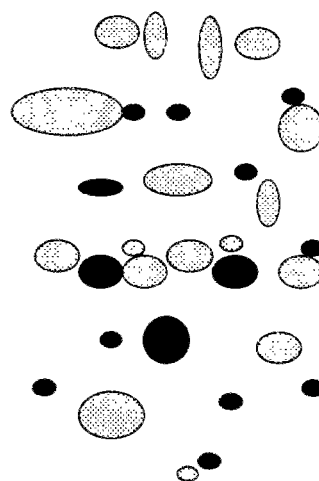
Agrégat type A : "boule"



Agrégat type B : "noyau"



Aspect général du champ de la binoculaire pour une fraction $>40\mu\text{m}$ pour une fraction supérieure à $40\mu\text{m}$



Aspect général de la fraction $<40\mu\text{m}$: particules fines + "gouttelettes" de goudron

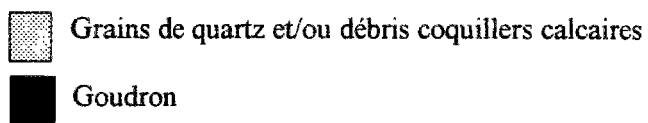


Figure II-5 : Représentation schématique des agrégats de goudrons observés sur les échantillons du sol S.

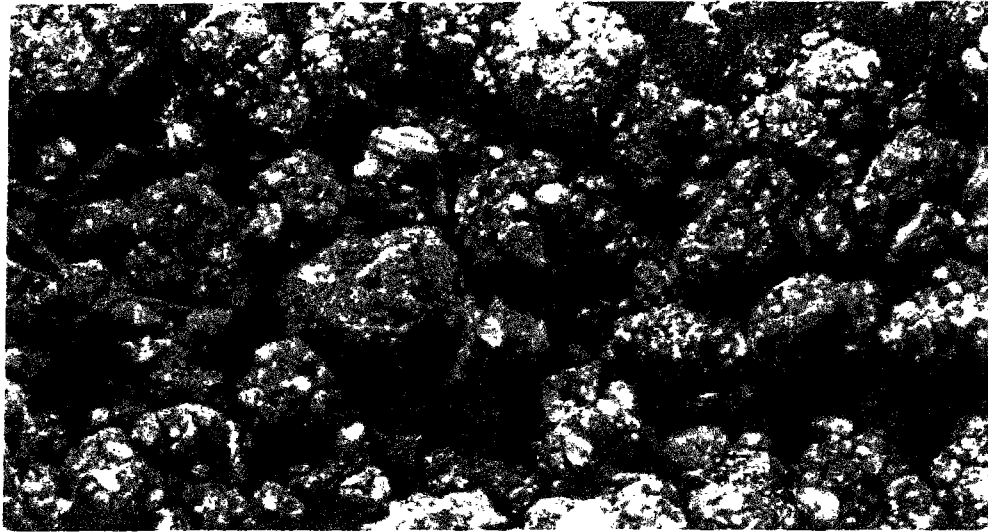


Figure II-6 : Observation de la fraction granulométrique inférieure à 2mm.

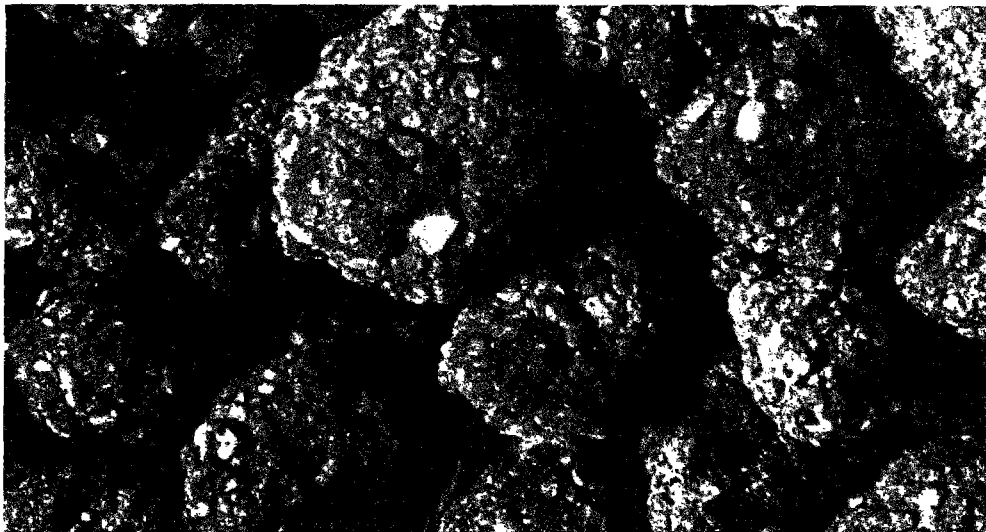


Figure II-7 : Observation de la fraction granulométrique 2-5mm.

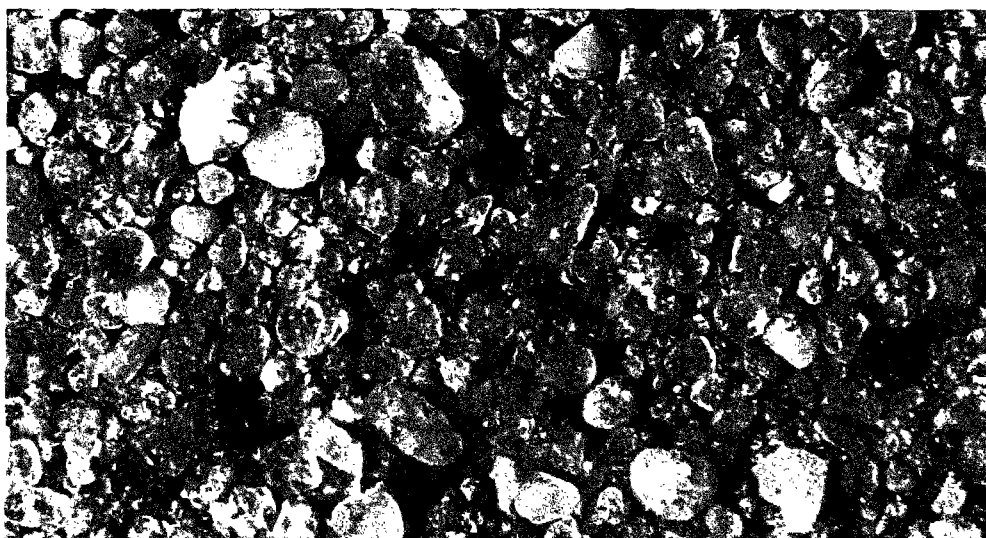


Figure II-8 : Observation de la fraction granulométrique <2mm après chauffage à 500°C pendant 18heures.

II.2.3. Identification de la phase minérale des échantillons par rayons X. Appareillage utilisé.

La détermination fut effectuée par diffraction des rayons X sur des échantillons séchés à 60°C et soigneusement réduits en poudre à particules inférieures à 125µm. La méthode, permet grâce à l'analyse des distances inter-réticulaires, d'identifier un minéral. Les diffractogrammes furent réalisés pour un domaine allant de 2 à 65° (angle 2θ), correspondant à des distances inter-réticulaires de 88 à 1.4Å d'un diffractomètre SIEMENS D501, à tube Cu, raie Kα, fonctionnant sous 40kV et 30mA. L'interprétation des diffractogrammes fut faite grâce aux programmes EVA et SEARCH du logiciel DIFFRAC/AT. Ces programmes sont basés sur l'utilisation des données JCPDS (Joint Committee on Power Diffraction Standards 1990).

II.2.4. Résultats obtenus par diffraction RX

Chaque fraction granulométrique fut systématiquement analysée. L'ensemble des résultats montrant la même composition typique, est représenté sur les figures II-9 et II-10, avec quelques variations dans les hauteurs relatives des pics.

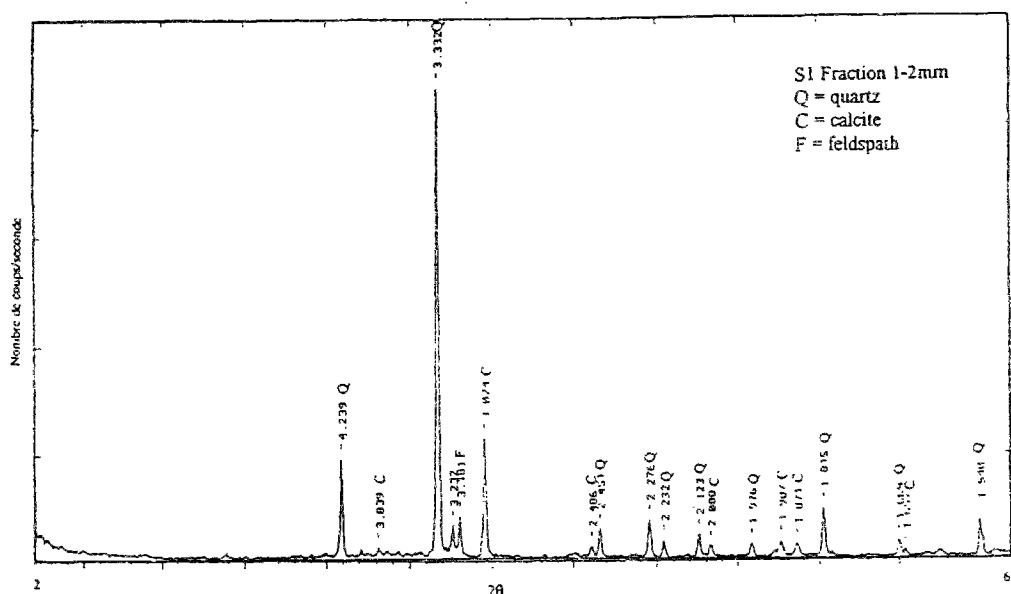


Figure II-9 : Diffractogrammes RX des échantillons de sol S1 fraction 1-2mm.

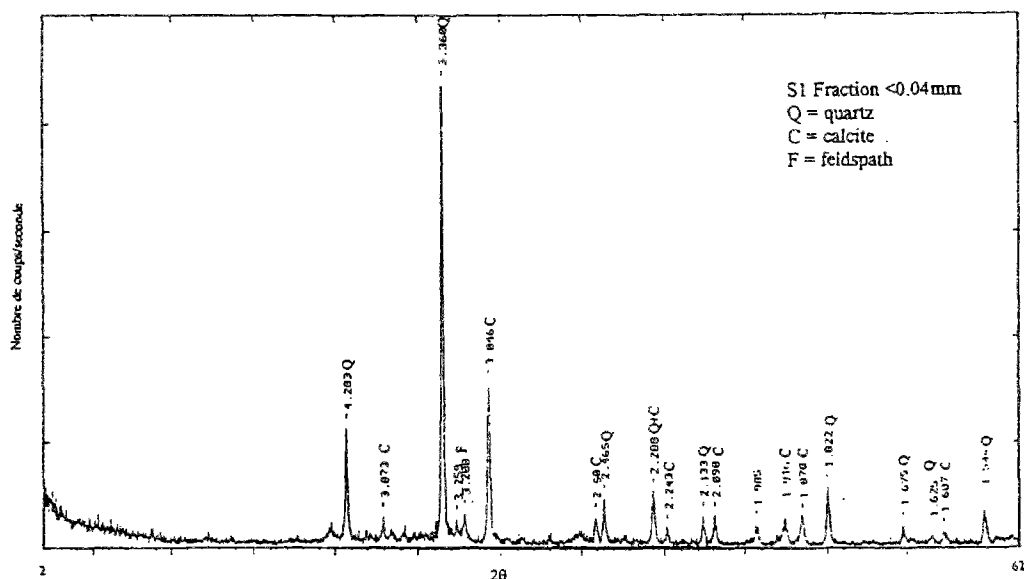


Figure II-10 : Diffractogrammes RX des échantillons de sol S1 fraction inférieure à 0,04mm.

II.2.5. Mesure de la teneur en carbonate par calcimétrie.

Des essais de calcimétrie par la méthode Dietrich-Fröling ont été réalisées sur le sable S1 à différentes fractions granulométriques, les résultats obtenus sont figurés sur le tableau II-3.

Fraction granulométrique étudiée	% de CaCO_3
S ₁ Global <10mm broyé	16
S ₁ 0.315-0.63mm broyé	30
S ₁ 0.16-0.315mm broyé	14.6
S ₁ <0.04mm	8.67

Tableau II-3 : Résultats d'essai de calcimétrie sur certaines fractions granulométriques du sable pollué S1.

II.2.6. Interprétation.

L'étude par diffractométrie RX du sable S contaminé par des hydrocarbures, après fractionnement granulométrique a mis en évidence une fraction sableuse constituée de grains minéraux de quartz majoritaires et de calcite minoritaires. La présence des hydrocarbures dans les échantillons ne semble affecter en rien l'allure des diffractogrammes par rapport à ceux obtenus classiquement sur des mélanges quartz-calcite non pollués.

II.2.7. Utilisation des pertes au feu pour quantifier la pollution.

II.2.7.1. Détermination des conditions optimales de traitement thermique.

Nous avons réalisés des essais préliminaires sur le matériau minéral constitutif de l'échantillon S1 le plus susceptible d'être sensible aux conditions thermiques des essais, à savoir la calcite. Ces essais ont été réalisés à 500°C puis à 600°C pendant 18 heures. Les résultats des pertes au feu obtenues, sont résumés dans le tableau II-4.

	PF500°C Calcite	PF600°C Calcite
Essai 1	0.059	2.62
Essai 2	0.054	4.2
Essai 3	0.057	5.6
Essai 4	0.055	3.0
Moyenne	0.056	3.854
Ecart type	0.002	1.164

Tableau II-4 : Détermination des conditions opératoires : essai de traitement thermique à 500°C et 600°C sur de la calcite pendant 18 heures, en four à circulation d'air avec aspiration des gaz.

Le traitement de l'échantillon de calcite à 600°C pendant 18 heures en four à circulation d'air par aspiration des gaz et dans nos conditions opératoires, montre que la perte au feu moyenne est de l'ordre de 3.85% contre 0.056% à 500°C. La température maximale pour nos essais a donc été fixée à 500°C pendant 18 heures.

II.2.7.2.Mode opératoire d'expérimentation utilisé et préconisé pour le traitement thermique.

Les échantillons séchés à 60°C, à poids constant, après fractionnement granulométrique par tamisage humide, sont pesés dans des creusets coniques de "forme haute" DEGUSSA en alumine, puis recouverts d'un mince grillage en nickel de maille 0.5mm, afin d'éviter d'éventuelles projections dans le four. Ces creusets sont ensuite introduits, à chaud dans un four à moufles PROLABO à circulation d'air par aspiration des gaz. Après deux heures de cuisson, les creusets sont sortis du four, et les matériaux y sont homogénéisés à la spatule de façon à ramener en surface les produits du fond.

Les creusets sont immédiatement remis au four pendant 16 heures. Ils sont ensuite sortis, refroidis en dessiccateur puis pesés.

II.2.7.3.Analyse de la pollution hydrocarbonée sur la base des pertes au feu obtenues à différentes températures.

La détermination quantitative de la teneur en contaminants hydrocarbonés pyrolysés à la température t°C est réalisée par la mesure de la perte au feu qui est calculée suivant la formule :

$$PF(t^{\circ}C) = \frac{P_i - P_f}{P_i} \times 100$$

Avec : PF(t°C) : perte au feu à la température t°C considérée, exprimée en pour-cent.

P_i : poids de l'échantillon avant calcination.

P_f : poids de l'échantillon après calcination.

Pour obtenir le pourcentage de la pollution totale hydrocarbonée, la température choisie doit donc être, pour les échantillons contaminés, suffisamment élevée pour permettre l'élimination quasi totale de la phase hydrocarbonée, sans qu'il y ait pour autant perturbation du sol. L'appréciation à la loupe binoculaire d'un échantillon calciné jusqu'à 600°C, montre qu'à partir de 500°C la teneur en contaminants hydrocarbonés résiduels peut être considérée comme très faible et inférieure à 5% de la pollution initiale. D'ailleurs, ces résultats sont confirmés plus loin par l'analyse chimique où les hydrocarbures constitutifs des goudrons sont inférieurs au seuil de détection de l'appareil (soit quelques ppm).

Les résultats exprimés dans le tableau II-5, synthétisent les pertes au feu moyennes obtenues sur la fraction granulométrique 0.315-0.63mm de l'échantillon S1. Quatre déterminations furent ainsi effectuées pour chaque palier de température.

Température (°C)	200	300	400	500	600
Pertes au feu moyennes (%)	0.72	2.25	4.98	5.73	7.18

Tableau II-5 : Pertes au feu moyennes obtenues lors des essais préliminaires sur la fraction 315µm-630µm du sable S1.

En régime de renouvellement des gaz par aspiration continue dans le four, la décarbonatation de la calcite avec dégagement de gaz carbonique au bout de 18 heures oscille autour de 4%, à 600°C, comme on peut le constater sur le tableau II-4, alors qu'elle est négligeable à 500°C.

L'observation à la loupe binoculaire des échantillons calcinés montre que les matériaux calcinés à 400°C pendant 18 heures ont perdu la plus grande partie de leur pollution hydrocarbonée. De plus, ceux calcinés à 500°C sont pratiquement exempts de pollution.

Compte tenu de la teneur en calcite du sable S1 (16% en moyenne), l'augmentation de perte au feu due aux hydrocarbures entre 500°C et 600°C serait donc :

$7.18 - 5.73 - (16 \times 0.04) = 0.81\%$ (fraction non pyrolysée à 500°C) soit

$(100 \times 0.81 / (7.18 - 0.64)) = 12.4\%$ (fraction pyrolysable à 600°C).

Ainsi si on admet qu'à 600°C la décomposition de la pollution hydrocarbonée est totale, elle est déjà réalisée à 88% environ à 500°C. En assimilant la pollution hydrocarbonée totale à la perte au feu à 500°C, on fait donc une erreur de 12% par défaut.

Par contre si on l'assimilait à la perte au feu à 600°C, on ferait une erreur :

$100 \times 0.64 / (7.18 - 0.64) = 9.8\%$ pour l'échantillon S1 qui ne contient que 16% de calcite, et une erreur de $100 \times (0.04 \times (100 - 6.5)) / 6.5 = 57.5\%$ pour un échantillon calcaire contenant la même pollution formé de 93.5% de calcite et de 6.5% de goudrons.

Il est ainsi évident qu'il vaut beaucoup mieux accepter une erreur systématique par défaut de 12% environ à 500°C, plutôt que de risquer de faire parfois, pour des sols calcaires, une erreur de 57% par excès en se référant à la perte au feu à 600°C. L'erreur pouvant atteindre à 600°C, 300% pour des sols dolomitiques.

II.2.8. Observations à la ^{loupe}binoculaire des matériaux traités à différentes températures.

Un changement d'aspect est facilement remarquable lors de l'observation des échantillons soumis à cuisson. Nous constatons une nette variation de l'aspect et de la couleur avec l'augmentation de la température. C'est à partir de 400°C que la teinte des échantillons s'éclaircit et ce changement de couleur est remarquable à 500°C : les agglomérats noirs ont pratiquement tous disparu. Le tableau II-6 regroupe les observations effectuées après traitement thermique.

Température (°C)	200	300	400	500	600
% de grains pollués noircis ou noirs	70 à 80	70	30	<1	<<1
Aspect après traitement thermique	agrégats bien individualisés	agrégats bien individualisés	désagrégation des agrégats	peu de matière carbonée à aspect scorie	Matière polluante rare
Teinte	noir brillant	noir brillant	mat gris clair	ocre	ocre orange

Tableau II-6 : Caractéristiques générales après calcination à différentes températures des échantillons S1 observés à la loupe binoculaire.

Il est donc acceptable d'envisager qu'en l'absence d'argile dans les fractions granulométriques supérieures à 40 microns, les différentes calcinations réalisées à 200, 300, 400, 500°C représentent différents stades de dépollution, correspondant à la volatilisation de produits de plus en plus lourds. A 500°C, dans nos conditions expérimentales, la pyrolyse des goudrons est presque complète. A 600°C, la décarbonatation de la calcite a déjà commencé, tandis que les rares résidus hydrocarbonés ayant résisté à 500°C ont disparu.

II.2.9. Conclusion.

D'une part, si l'on considère que la perte au feu à 500°C pendant 18 heures, n'est pratiquement pas influencée par la décarbonatation de la calcite, nous pouvons alors considérer, qu'en l'absence d'argile, elle représente la destruction pratiquement totale des contaminants hydrocarbonés.

Pour toutes les fractions supérieures à 40 microns, a priori pauvres en argiles, c'est donc probablement la perte au feu à 500°C qui représente le mieux l'importance globale de la pollution hydrocarbonée.

Pour les fractions granulométriques inférieures à 40 microns, contenant des argiles, la perte au feu à 500°C engloberait leur perte d'eau de constitution à 500°C qui peut être très variable d'une argile à l'autre, et atteint, par exemple, 13% pour les kaolinites.

D'autre part, si l'on considère que la perte au feu à 300°C n'est pas influencée par la déshydroxylation des argiles et est donc due entièrement à la destruction de la fraction d'hydrocarbures volatilisables dès 300°C, nous pouvons considérer que la perte au feu à 300°C représente dans cette hypothèse une valeur minimale de la pollution hydrocarbonée.

Cette étude préliminaire de caractérisation et les premiers essais d'approche de la répartition de la pollution avant et après calcination permettent de dégager certains faits :

- d'une part, si la présence de la pollution est nettement observable pour une gamme de températures de calcination inférieures ou égales à 400°C, l'existence d'un phénomène d'aggrégation des particules minérales par le polluant est caractéristique et prédominant dans toutes les fractions granulométriques de sol observées.
- d'autre part, la calcination des différents échantillons à 500°C ne laisse apparaître qu'une quantité de grains pollués résiduelle inférieure à 1%, si l'on se réfère aux planches d'identification utilisées. De cette constatation, nous avons posé comme hypothèse de travail le fait que la "dépollution" du sol est réalisée quasi entièrement à 500°C après 18 heures de calcination avec homogénéisation, dans un four à moufle à circulation d'air.
- Aussi, c'est l'importance de l'aspect aggloméré, et la répartition de la pollution hydrocarbonée dans le sol, qui nous conduisent dans notre étude, à définir un taux d'agglomération par fractions granulométriques et un taux d'agglomération global de l'échantillon considéré.

II.3. Répartition de la pollution entre les différentes fractions granulométriques.

II.3.1. Introduction.

Tout au long de notre travail, nous avons présenté sous formes d'histogrammes les pertes au feu, exprimées en pourcentage, de chaque fraction granulométriques, obtenues après traitement à 300°C et 500°C pendant 18 heures selon le mode opératoire décrit au paragraphe II.2.7.2.

La répartition du polluant assimilée à la perte au feu à 500°C fut ensuite interprétée en tenant compte à la fois de la pollution de chaque fraction, et de l'importance pondérale de chaque fraction dans la courbe granulométrique du sol contaminé.

De cette manière, il fut possible de mettre en évidence la concentration préférentielle des hydrocarbures dans certaines fractions granulométriques, et ainsi d'affiner l'approche expérimentale décrite en introduction.

La contribution pondérée d'une fraction granulométrique "i" à la perte au feu absolue pour 100 grammes de matériau brut séché à 60°C pour la température (t°C) est calculée suivant la formule :

$$PFA_{(T^{\circ}C)_i} = \frac{PF_{(T^{\circ}C)_i} \times FB_{(\%)_i}}{100}$$

Avec:

- PFA_i : Contribution (%) de la fraction granulométrique "i" à la perte au feu absolue de 100g de matériau brut à la température (T°C).
- PF_{(T°C)_i} : Perte au feu (%) à T°C, de la fraction "i".
- FB_{(%)_i} : Importance (%) de la fraction granulométrique "i" dans la courbe granulométrique du matériau brut séché à 60°C

La contribution relative de la fraction granulométrique "i" à la perte au feu, à la température T°C, du matériau brut séché à 60°C est :

$$(PFR_{(\%)})_i = \frac{(PFA)_i}{\sum PFA} \times 100 \quad \text{avec} \quad \sum_1^n (PFR_{(\%)})_i = 100$$

Avec :

- (PFR)_i : Contribution relative (%) de la fraction granulométrique "i", à la perte au feu du matériau brut, à T°C.
- (PFA)_i : Perte au feu absolue (%) attribuable à la fraction "i" du matériau brut à T°C

$$\sum PFA = \sum_1^n (PFA)_i = PF \quad \text{du matériau brut séché à 60°C.}$$

Pour nos calculs, le poids de matériau sec initial est déterminé par la formule suivante :

$$(PPSI)_i = \frac{100 \times (\sum FTS)_i}{(100 - PF_i)}$$

Avec :
 (PPSI)_i : Poids Pollué Sec Initial en gramme pour la fraction "i"
 (ΣFTS)_i : Somme des sous-fractions granulométriques obtenues par tamisage à sec de la fraction "i", après traitement thermique.
 PF_{(T°C)_i} : Perte au feu moyenne de la classe granulométrique "i" à la température T en°C

II.3.2. Définition d'un taux d'agglomération basé sur les effets granulométriques du traitement à 500°C.

Au cours du traitement thermique d'une fraction granulométrique, il se produit une modification de la courbe granulométrique due au fait que les particules, auxquelles se trouvait agglomérée la phase hydrocarbonée, par départ de celle-ci, passent dans des classes granulométriques inférieures. Un taux d'agglomération peut alors être déduit des quantités résiduelles appartenant à la classe granulométrique calcinée. La contamination par des goudrons issus de la pyrolyse de la houille a pour effet de coller les grains les uns aux autres pour donner des agrégats. Le traitement pendant 18 heures à 500°C détruit les hydrocarbures et libère les grains agglomérés dont la taille réelle est caractérisée par tamisage à sec, après cuisson de chaque fraction granulométrique calcinée.

Nous définissons l'agglomération A_i(%), dans une fraction granulométrique "i" du sol comme étant le pourcentage d'éléments étrangers à cette fraction granulométrique par la formule :

$$A_i(\%) = \frac{Pb_i - Pd_i}{Pb_i} \times 100$$

Avec :
 Pb_i : Poids pollué sec initial de la fraction granulométrique "i" soumise à cuisson à 500°C-18 heures (éléments propres à la classe granulométrique considérée + éléments étrangers à cette classe).
 Pd_i : Poids de la même fraction "i" après traitement thermique à 500°C et après tamisage à sec (éléments propres à la classe granulométrique considérée).

Pour quantifier globalement l'agglomération des grains à l'échelle du sol entier, nous définissons un pourcentage moyen d'agglomération A_m en pondérant les pourcentages d'agglomération des diverses fractions par leurs poids respectifs dans la courbe granulométrique du sol pollué sec.

$$A_m(\%) = \frac{1}{100} \sum A_i(\%) \times F_i(\%)$$

Avec :
 A_i(%) : le pourcentage d'agglomération de la fraction "i"
 F_i(%) : le pourcentage de sol de la fraction "i" dans le sol pollué sec.

II.3.3. Etude expérimentale de la pollution des différentes fractions granulométriques de divers sols pollués.

Nous référençons les échantillons comme suit:

S1	Ech 1993.	S2	Ech 1994
S3	Ech 1995	S4NP	Ech 1994 non pollué

II.3.3.1. Etude granulométrique des sols pollués.

Les résultats des courbes granulométriques sont donnés sur le tableau II-7. Les tamisages ont été réalisés sous jet d'eau suivant le mode opératoire décrit en annexe 1.

Classes Granulométriques en mm	S 1		S 2		S 3		S 4NP	
	Fraction (%)	Passant cumulé (%)	Fraction (%)	Passant cumulé (%)	Fraction (%)	Passant cumulé (%)	Fraction (%)	Passant cumulé (%)
20-40	-	-	2.51	100	-	-	0.12	100
10-20	4.19	100	3.31	97.50	0.64	100	0.13	99.98
5-10	2.35	95.80	7.29	94.19	4.82	99.36	0.19	99.76
2.5-5	4.62	93.46	4.76	86.90	5.08	94.54	0.07	99.57
1.25-2.5	6.01	88.84	6.92	82.14	5.22	89.47	0.61	99.50
0.63-1.25	7.62	82.33	10.29	75.22	8.87	84.24	13.91	98.90
0.315-0.63	40.39	75.21	22.06	64.93	23.29	75.37	38.74	84.99
0.16-0.315	21.82	34.81	18.53	42.86	32.09	52.09	34.35	46.25
0.08-0.16	4.04	12.99	5.25	24.33	3.56	19.99	3.44	11.90
0.04-0.08	2.96	8.95	5.55	19.08	1.98	16.43	2.20	8.46
<0.04	5.98	5.98	13.53	13.53	14.44	14.44	6.26	6.26
Total	100	-	100	-	100	-	100	-

Tableau II-7 : Résultats des granulométries effectuées sur les échantillons des sols bruts étudiés.

II.3.3.2. Pertes au feu des diverses fractions granulométriques après 18 heures à 300°C et à 500°C.

Les résultats obtenus après calcination selon le mode opératoire décrit dans le paragraphe II.2.7.2, sont rassemblés dans les tableaux II-8 et II-9.

Classes granulométriques en mm	% PF300°C-18h S1	% PF300°C-18h S2	% PF300°C-18h S3	% PF300°C-18h S4NP
20-40	-	3.22	-	-
10-20	5.07	6.23	4.75	0.44
5-10	5.68	5.43	6.35	2.32
2.5-5	7.29	5.52	6.90	2.34
1.25-2.5	4.04	4.60	6.54	1.20
0.63-1.25	2.08	5.10	6.78	0.60
0.315-0.63	1.76	2.06	1.92	0.58
0.16-0.315	1.27	1.23	1.32	0.71
0.08-0.16	2.40	12.19	7.85	0.68
0.04-0.08	5.49	9.71	6.14	1.16
<0.04	13.44	14.21	12.83	3.23

Tableau II-8 : Pertes au feu (%) obtenues après traitement thermique à 300°C pendant 18 heures, en four à aspiration des gaz.

Classes granulométriques en mm	% PF500°C-18h S 1	PF500 / PF300	% PF500°C-18h S 2	PF500 / PF300	% PF500°C-18h S 3	PF500 / PF300	% PF500°C-18h S 4NP
20-40	-	-	9.88	-	-	-	0.91
10-20	12.67	2.50	21.72	6.56	8.65	13.52	1.00
5-10	25.61	4.51	28.61	3.92	20.14	4.18	2.52
2.5-5	26.95	3.70	32.09	6.74	32.20	6.34	2.52
1.25-2.5	32.85	8.13	32.42	4.68	37.79	7.24	2.20
0.63-1.25	14.53	6.99	19.51	1.90	26.81	3.02	1.27
0.315-0.63	6.86	3.90	9.77	0.44	12.55	0.54	0.99
0.16-0.315	4.63	3.65	6.63	0.36	7.30	0.23	0.65
0.08-0.16	15.03	6.26	27.13	5.17	24.56	6.90	1.08
0.04-0.08	19.42	3.54	17.56	3.16	21.52	10.86	1.76
<0.04	20.00	1.49	20.98	1.55	22.51	1.56	5.21

Tableau II-9 : pertes au feu obtenues à 500°C, pendant 18 heures en four à aspiration des gaz.

Si on ne tient pas compte du poids de chaque fraction (donc de la pondération) on peut remarquer que sur l'ensemble des fractions considérées, c'est la fraction inférieure à 40µm qui est la plus homogène et où la distribution de la pollution varie le moins. Si on admet que la fraction 10-20cm est la plus sujette à erreur, l'ensemble des fractions est assez homogène sauf l'intervalle 0.16-0.63mm où les pertes au feu à 500°C sont inférieures à celles obtenues à 300°C.

Le sol pollué choisi est donc globalement bien homogène au niveau de la distribution de la pollution carbonée.

A 300°C, les pertes au feu, qui ne peuvent pas être attribuées à la déshydroxylation des argiles sont beaucoup plus importantes pour la fraction inférieure à 40µm que pour les fractions sableuses. Elles représentent pour les échantillons contaminés par les hydrocarbures 13.4%, 14.21% et 12.83% respectivement pour les trois échantillons de sol pollués testés. En revanche la perte au feu exprimée pour l'échantillon S 4NP, non pollué, et pour la même fraction granulométrique inférieure à 0.04mm, ne représente que 3%.

Les fractions des sols pollués se répartissent en quatre groupes par leurs pertes au feu à 300°C :

- <0.04mm : 13%<PF300°C<14%.
- 0.04 à 0.16mm : 6%<PF300°C<12% en général
- 0.16 à 0.63mm : 1%<PF300°C<2% en général
- >0.63mm : 4%<PF300°C<7% en général.

A 500°C, l'ensemble des fractions présente des pertes au feu nettement supérieures à celles mesurées à 300°C. On retrouve le classement en quatre groupes de fractions polluées :

- <0.04mm : 20%<PF500°C<22%.
- 0.04 à 0.16mm : 15%<PF500°C<27% en général
- 0.16 à 0.63mm : 5%<PF500°C<12% en général
- >0.63mm : 15%<PF500°C<38% en général.

En général, les fractions comprises entre 0.16mm et 0.63mm qui sont les mieux représentées dans les courbes granulométriques (40 à 60%) sont les moins polluées. Les représentations des pertes au feu après 18 heures à 300°C et 500°C des différentes fractions granulométriques prises individuellement pour chaque échantillon sont représentées en figure II-11.

A remarquer que l'échantillon S4 NP, considéré lors de l'échantillonnage comme non pollué, l'est probablement un peu malgré tout. Sinon il est difficilement envisageable d'expliquer des pertes au feu à 300°C de 1,2 à 2,3% pour des grains de sables quartzueux ou calciteux supérieurs à 1.25mm (tableau II-8).

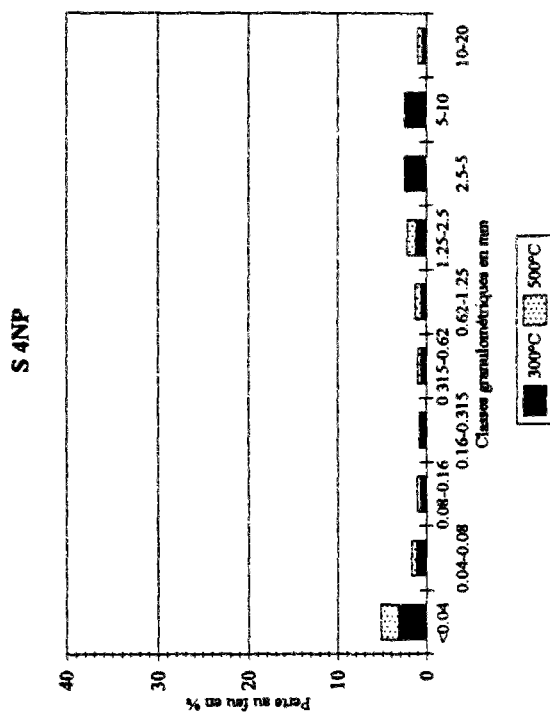
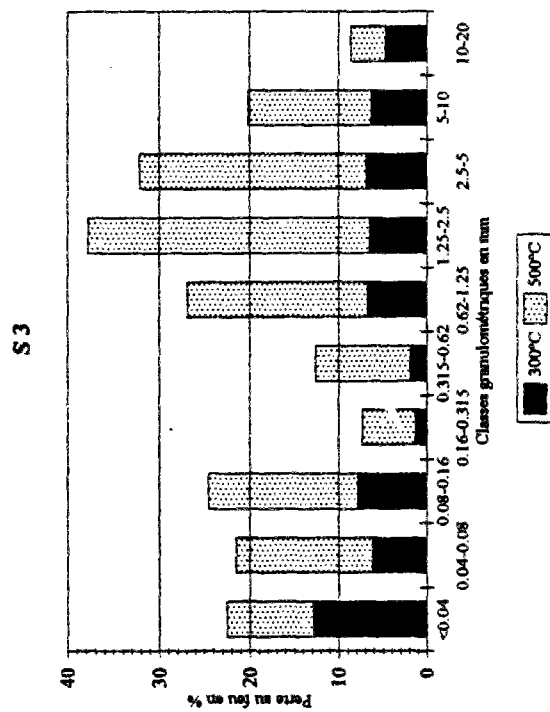
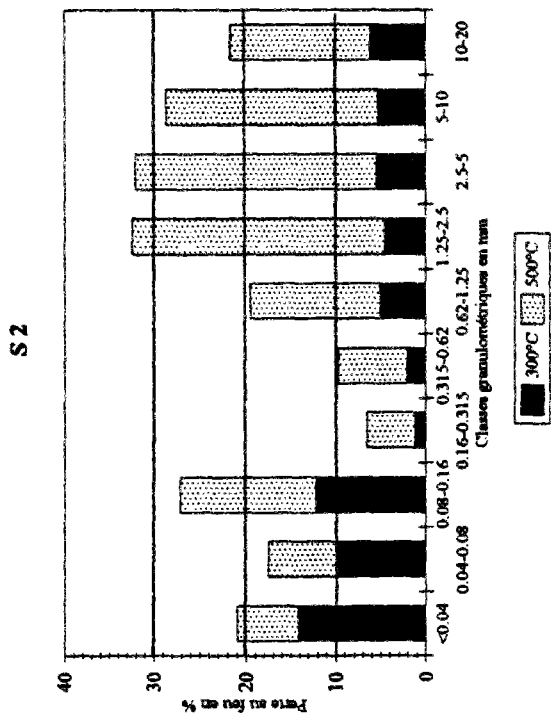
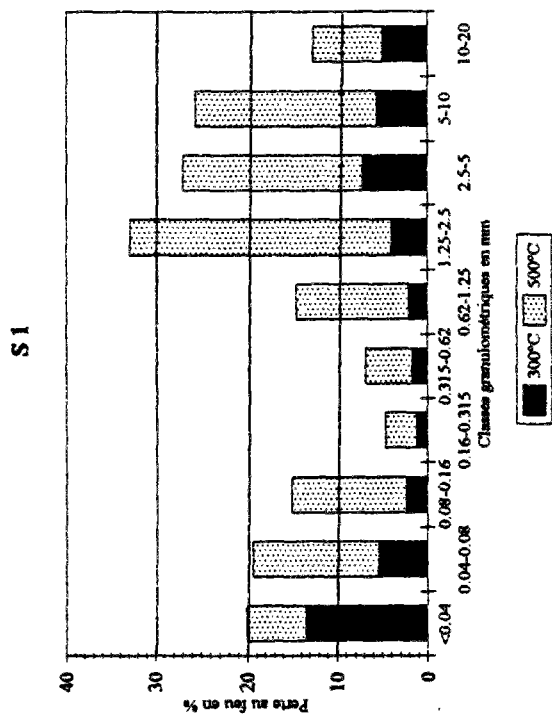


Figure II-11 : Représentation des pertes au feu après 18 heures à 300° et 500°C

Les tableaux II-10 et II-11 donnent les résultats des pertes au feu absolues et relatives, pour 300°C et 500°C, après pondération par la courbe granulométrique (tableau II-7) des pertes au feu obtenues sur les diverses fractions granulométriques (tableaux II-8 et II-9).

300°C	S1		S2		S3		S 4NP	
Classes granulométriques en mm	PFA (g/100g)	PFR (%)	PFA (g/100g)	PFR (%)	PFA (g/100g)	PFR (%)	PFA (g/100g)	PFR (%)
20-40	-	-	0.08	1.44	-	-	3E-04	0.03
10-20	0.21	6.71	0.21	3.70	0.03	0.64	5E-04	0.06
5-10	0.13	4.15	0.40	7.10	0.31	6.43	4E-03	0.51
2.5-5	0.34	10.86	0.26	4.72	0.35	7.37	1.6E-03	0.20
1.25-2.5	0.24	7.67	0.32	5.71	0.34	7.19	7.3E-03	0.92
0.63-1.25	0.16	5.11	0.52	9.42	0.60	12.64	0.08	10.13
0.315-0.63	0.71	22.68	0.45	8.14	0.45	9.40	0.22	27.85
0.16-0.315	0.28	8.95	0.23	4.09	0.42	8.91	0.24	30.38
0.08-0.16	0.10	3.19	0.64	11.47	0.28	5.88	0.02	2.53
0.04-0.08	0.16	5.11	0.54	9.69	0.12	2.56	0.02	2.53
<0.04	0.80	25.56	1.92	34.50	1.85	38.97	0.2	25.32
TOTAL	3.13	100	5.57	100	4.76	100	0.79	100

Tableau II-10 : Résultats des perte au feu absolues (g/100g de sol) et relatives (%) obtenues à 300°C pendant 18 heures par pondération aux courbes granulométriques

500°C	S1		S2		S3		S 4NP	
Classes granulométriques en mm	PFA (g/100g)	PFR (%)	PFA (g/100g)	PFR (%)	PFA (g/100g)	PFR (%)	PFA (g/100g)	PFR (%)
20-40	-	-	0.25	1.41	-	-	1.1E-03	0.09
10-20	0.53	4.56	0.72	4.13	0.06	0.33	1.3E-03	0.10
5-10	0.60	5.16	2.08	11.94	0.97	5.85	4.7E-03	0.39
2.5-5	1.25	10.76	1.53	8.76	1.63	9.87	1.7E-03	0.14
1.25-2.5	1.97	16.95	2.24	12.85	1.71	10.34	0.013	1.08
0.63-1.25	1.11	9.55	2.01	11.50	2.38	14.35	0.176	14.66
0.315-0.63	2.77	23.84	2.16	12.35	2.92	17.64	0.383	31.91
0.16-0.315	1.01	8.64	1.23	7.04	2.34	14.14	0.223	18.58
0.08-0.16	0.61	5.25	1.42	8.16	0.88	5.28	0.037	3.08
0.04-0.08	0.57	4.91	0.97	5.58	0.43	2.57	0.038	3.16
<0.04	1.20	10.33	2.84	16.27	3.25	19.62	0.326	27.16
TOTAL	11.62	100	17.45	100	16.57	100	1.20	100

Tableau II-11 : Répartition absolue (en g/100g de sol) et relative (%) de la pollution assimilée aux pertes au feu à 500°C après 18 heures entre les fractions granulométriques des sols S avec les pertes au feu moyennes.

II.3.4. Interprétation des résultats des traitements effectués à 300°C et 500°C pendant 18 heures, en vue de l'étude de la répartition de la pollution entre les différentes fractions granulométriques.

Pour caractériser la pollution dans les échantillons de sol étudiés, nous nous référons aux cinétiques des pertes au feu, et ensuite aux taux d'agglomération calculés.

Au vu des résultats présentés dans les tableaux II-9 et II-8, nous constatons que les pertes au feu à 500°C sont totalement différents des résultats obtenus à 300°C avec notamment une forte augmentation des valeurs de pertes au feu dans les fractions grossières, en particulier dans les fractions granulométriques supérieures à 1.25 mm.

En gros, on obtient la perte au feu à 500°C en multipliant la perte au feu à 300°C par un coefficient x , avec :

- $x \approx 1.5$ pour l'inférieur à 0.04mm.
- $x \approx 2.5$ pour les fractions comprises entre 0.04-0.16mm.
- $x \approx 5$ pour le supérieur à 0.16mm. Ainsi la pollution des fractions les plus fines s'extrait plus facilement que celle des fractions sableuses grossières.

Pour simplifier le commentaire, nous expliquons notre démarche interprétative sur l'ensemble des échantillons, et plus particulièrement sur l'échantillon S3. Les différences de résultats entre les échantillons seront interprétées ensuite.

En admettant le postulat de base suivant lequel la perte au feu à 500°C caractérise globalement, la contamination hydrocarbonée totale, nous estimons alors que les valeurs des pertes au feu, ainsi que les différences obtenues entre 300°C et 500°C, caractérisent la "difficulté" et la cinétique de "dépollution" du goudron, bien que les termes que nous pouvons employer en tant que différenciation entre hydrocarbures légers ou lourds ne soient pas tout à fait adéquats. En effet, nous ne pouvons que nous référer à des différences de poids avant et après traitement thermique, et non à des différenciations qualitatives et analytiques sur la nature et la composition des éléments perdus lors des échanges thermiques et les oxydations induits durant le traitement. C'est aussi dans ces termes de caractérisation globale et de quantification légèrement surestimée, (la matière organique du sol de type humique n'étant pas identifiée), qu'il faut comprendre notre démarche.

Par exemple, en ce qui concerne l'échantillon S3, l'analyse des résultats obtenus permet de dégager certains faits :

- d'une part, dans les fractions fines inférieures à 0.16mm, c'est 44.5% de la pollution totale assimilée à la perte au feu à 500°C qui est volatilisée dès 300°C, alors que dans les fractions moyennes à grossières (plus hétérogènes), c'est à dire comprises entre 0.16 et 10mm, seulement 35% de la pollution se volatilise à 300°C. Il apparaît donc dans cette logique, que la pollution des fractions fines est nettement plus "volatile" que la pollution des fractions grossières, où que la quantité de la pollution est plus importante dans les fines, ou bien que la quantité de pollution est plus importante dans les fractions fines.
- d'autre part, en pondérant les résultats obtenus à 300°C et à 500°C par la courbe granulométrique, nous pouvons constater que, si l'on considère l'hypothèse selon laquelle la dépollution des sols étudiés est entièrement réalisée à 500°C, la pollution moyenne de S3 (tableau II-11) assimilée à la perte au feu à 500°C, est de 16.57% alors que la perte au feu à 300°C de S3 n'est que de 4.76% (tableau II-10).

On comprend alors, que pour 100 grammes de sol S3 pollué, 4.76g d'hydrocarbures seraient détruits à 300°C, et donc 11.81g ne le seraient qu'au dessus de 300°C. Enfin sur les 4.76g d'hydrocarbures volatilisables à 300°C, 2.25g se trouvent localisés dans les fractions fines inférieures à 0.16mm., la pollution contenue dans la partie fine paraît moins soumise aux variations dues aux changements d'états.

Le même raisonnement peut être tenu pour les autres échantillons pollués, seuls les chiffres varient des échantillons de sable S1 à S3.

II.3.4.1. Répartition de la pollution entre les fractions granulométriques.

Pour l'échantillon S3, nous pouvons constater que dans 100 grammes d'échantillon, la pollution totale, assimilée à la perte au feu obtenue après 18 heures à 500°C et égale à environ 16.57g (la matière organique n'étant pas déduite), se répartit de la manière suivante :

- pour 3,25g, soit 19,6% dans la fractions ultra-fine inférieure à 40 microns.
- pour 1,31g, soit 8% dans les fractions fines comprises entre 40 microns et 0,16mm, [soit 28% pour les fines];
- pour 9,35g soit 56,4% dans les fractions moyennes comprises entre 0,16 et 2,5mm;
- enfin pour 2,6g, soit 16% dans les fractions grossières supérieures à 2,5mm.

C'est donc la fraction sableuse (0,16-2,5mm) qui contient le plus de polluant soit environ la moitié. En revanche, il faut souligner que la fraction ultra-fine inférieure à 0,04 millimètres, qui ne représente que 14% de l'échantillon, contient ≈20% de la pollution totale, et que la fraction fine comprise entre 0,04 et 0,16mm qui représente 6% du sol, contient 8% des hydrocarbures totaux, alors que la fraction sableuse 0,16-2,5 millimètres, qui représente 80% du sol, ne contient que 56% de la pollution. Mais la fraction sableuse, majoritaire dans l'échantillon, bien que contenant la plus grande partie des goudrons, est en fait relativement "moins polluée" que les fractions fines et ultra-fines.

Si on admet que les cinétiques de la volatilisation et de l'oxydation des hydrocarbures, sont reliées au caractère "volatile" des polluants présents dans les sols, alors le rapport entre les pertes au feu à 300°C sur celles obtenues à 500°C caractériserait la cinétique de dépollution des hydrocarbures, les plus facilement mobilisables lors du traitement thermique, étant à priori, les plus "légers" et les plus volatiles.

La comparaison des différents résultats représentés sur l'ensemble des figures II-11 nous permet de mettre en évidence certains points convergents :

L'ensemble des pertes feu, qu'elles aient été effectuées à 300°C ou à 500°C pendant 18 heures, montre une certaine homogénéité des résultats pour la répartition globale des hydrocarbures au sein des différentes fractions granulométriques des échantillons pollués S1, S2, et S3.

En revanche les différences des histogrammes au sein de chaque classe granulométrique montrent un caractère légèrement plus hétérogène des matériaux 1 et 2 prélevés dans une zone différente de la zone de prélèvement de l'échantillon 3 moins perturbée. Les échantillons, S1 et S2 sont des mélanges de sable et de goudron, préparés sur site, S3 est un échantillon prélevé directement dans le sol plus en profondeur et n'ayant subi aucune modification par mélange.

Les résultats obtenus sur le sable non pollué montrent des pertes au feu très faibles dans l'ensemble, voire négligeables (tableaux II-10 et II-11).

II.3.4.2. Modification des courbes granulométriques après traitement à 300°C et 500°C et calcul des taux d'agglomération.

Si la calcination à 500°C a visiblement (observations à la binoculaire) pour effet de détruire les agrégats "minéraux-goudrons", il nous fallait quantifier ce phénomène. Pour réaliser cette quantification, nous avons retamisé à sec, après traitement, chaque fraction de sol soumise à la mesure de la perte au feu pendant 18 heures, d'une part à 300°C, et d'autre part à 500°C. La granulométrie obtenue après passage au four à 500°C pendant 18 heures peut être considérée, suivant notre hypothèse de départ, comme assez représentative du sol initial tel qu'il aurait été avant pollution.

Les résultats obtenus après nos essais de calcination à 300°C et 500°C sont résumés dans le tableau II-12 et le tableau II-13.

Classes granulométriques en mm	S1			S2			S3			S4NP		
	Gran 300	Gran 500	Ai(%) 500	Gran 300	Gran 500	Ai(%) 500	Gran 300	Gran 500	Ai(%) 500	Gran 300	Gran 500	Ai(%) 500
20-40	-	-	-	2.55	1.63	46.07	-	-	-	0	0.11	4.04
10-20	1.98	2.69	43.24	2.30	2.08	50.35	0.47	0.70	8.65	0.11	0.06	55.36
5-10	1.42	2.03	53.26	7.75	4.48	52.27	4.79	4.51	21.81	0.15	0.23	8.27
2.5-5	3.96	2.75	48.60	3.23	2.24	69.25	4.88	4.11	33.54	0.06	0.07	14.59
1.25-2.5	4.81	1.99	74.70	5.62	4.14	64.82	4.96	4.01	37.15	0.26	0.25	61.45
0.63-1.25	7.15	1.42	90.86	7.21	3.82	79.39	8.36	7.26	33.45	4.34	4.01	73.63
0.315-0.63	23.54	17.45	67.90	17.50	15.29	58.88	22.53	22.44	21.20	32.46	35.47	27.94
0.16-0.315	36.97	44.58	25.29	28.50	35.5	16.13	34.00	36.44	10.63	49.71	45.51	4.14
0.08-0.16	9.84	14.57	32.74	5.94	6.52	59.76	3.55	3.20	50.21	4.38	5.51	3.14
0.04-0.08	2.98	4.81	42.43	4.84	7.25	48.68	1.98	2.04	44.70	2.11	2.46	9.57
<0.04	7.25	7.70	20.00	14.56	16.95	20.98	14.48	15.29	22.51	6.30	6.43	5.21
TOTAL	100	100	-	100	100	-	100	100	-	100	100	-

Tableau II-12 : Courbes granulométriques et taux d'agglomération $A_i(\%)$ après calcinations des échantillons étudiés. (Gran 300 et 500=granulométrie effectuée après calcination à la température considérée).

Si l'on considère que 500°C est la température de "dépollution" totale, le tamisage à sec des fractions granulométriques, après cuisson, fractions par fractions, permet de caractériser l'agglomération des grains sur la base de la définition du taux d'agglomération donnée au paragraphe II-3.2.

Les différences des courbes granulométriques initiales peuvent alors être interprétées comme étant dues à la nature et à la composition des agrégats de goudrons, dont la teneur en matière hydrocarbonée peut être différente d'une fraction granulométrique à l'autre.

Le tableau II-13 rassemble les valeurs obtenues pour les calculs des taux d'agglomération moyens qui nous renseignent sur la quantité globale de matériau aggloméré.

	S 1	S 2	S 3	S 4NP
$A_m(\%)$	53	47	22	23

Tableau II-13 : Taux d'agglomération moyens des différents échantillons S.

II.3.5. Interprétation des résultats d'agglomération.

Si les échantillons S 1, S2 et S3 présentent des caractéristiques de pertes au feu similaires, il faut dans les résultats des pertes au feu absolues exprimées à 300°C et 500°C, sur le tableau II-10 et le tableau II-11, considérer que les différences obtenues ne sont pas vraiment significatives.

En effet, l'hétérogénéité du matériau de départ S1, influe probablement sur les résultats. Les campagnes d'échantillonnages ont été effectuées à des périodes relativement espacées dans le temps, il est alors fortement envisageable que les conditions de prélèvement sur le terrain et de mise en oeuvre des échantillons ont pu influencer les résultats obtenus lors des traitements et des conditionnements des échantillons dans le laboratoire.

En comparant les études effectuées sur les trois échantillons de sols pollués (S1, S2, S3), il semble se confirmer, que l'agglomération moyenne des grains y est importante puisqu'elle est respectivement à 53% et 47 % pour les échantillons S1 et S2 issus de la même campagne de prélèvements.

En revanche, l'agglomération moyenne de l'échantillon S3, égale à 22%, est inférieure aux précédentes. La répartition des polluants au sein des fractions granulométriques représentée par les taux d'agglomération respectifs, montre (Tableau II-12) qu'une tendance similaire de valeurs maximales d'agglomération, pour les fractions 0.315-5mm centrées sur les fractions 0.63 à 2.5mm, et pour les fractions fines inférieures à 0.16mm, est commune aux trois sols S1, S2, et S3.

Sur la figure II-13, on remarque que les courbes obtenues pour les trois échantillons S1, S2, et S3 :

- sont assez différentes pour les échantillons bruts,
- se rapprochent, au contraire, après traitement à 500°C.

Il semble donc que ces trois échantillons S1, S2, S3 correspondent à des pollutions différentes d'un même sol représenté par les courbes obtenues après calcination à 500°C.

Les courbes "brut" et "500°C" sont très éloignées les unes des autres pour les échantillons S1 et S2, ce qui va de pair avec des forts taux d'agglomération moyens : $A_m=53\%$ pour S1 et $A_m=47\%$ pour S2 équivalents pour les deux sols (tableau II-13), malgré des taux de pollutions nettement différents : $PF_{500}=11.6\%$ pour S1 et $PF_{500}=17.4\%$ pour S2 (tableau II-11). Les courbes "brut" et "500°C" sont au contraire très proches l'une de l'autre pour le sol S3, ce qui correspond à un faible taux d'agglomération moyen $A_m=22\%$ (tableau II-13) malgré un taux de pollution important ($PF_{500}=16.6\%$), équivalent à celui de S2.

Ainsi il n'y a pas équivalence entre taux d'agglomération moyen (A_m) et taux de pollution (PF_{500}) : une même quantité de goudron peut donc coller plus ou moins les grains de sol entre eux.

L'échantillon S4NP, bien que considéré comme non contaminé par des goudrons issus de la pyrolyse de la houille, ne peut pas être retenu, au vu des résultats obtenus, comme base de référence avant la contamination.

En effet les fractions sableuses supérieures à 0.63mm, qui représentent environ 14% de l'échantillon, présentent des pertes au feu à 500°C voisines de 2% (tableau II-9) et des valeurs d'agglomération élevées ($A=73\%$ pour le 0.63mm-1.25mm, tableau II-12).

De plus, la courbe granulométrique S4 NP initiale et après calcination à 500°C (figure II-13 S 4NP) sont assez différentes des courbes obtenues après calcination à 500°C pour les échantillons S1, S2, S3, qui toutes trois, au contraire, se ressemblent beaucoup (figure II-13 S1-S2-S3).

Il apparaît donc difficile de choisir sur le terrain, pour un site donné, un sol non pollué de référence. Dans le cadre de notre caractérisation en laboratoire, la référence du sol non pollué doit donc être fournie par l'échantillon pollué lui même, après traitement thermique (référence interne).

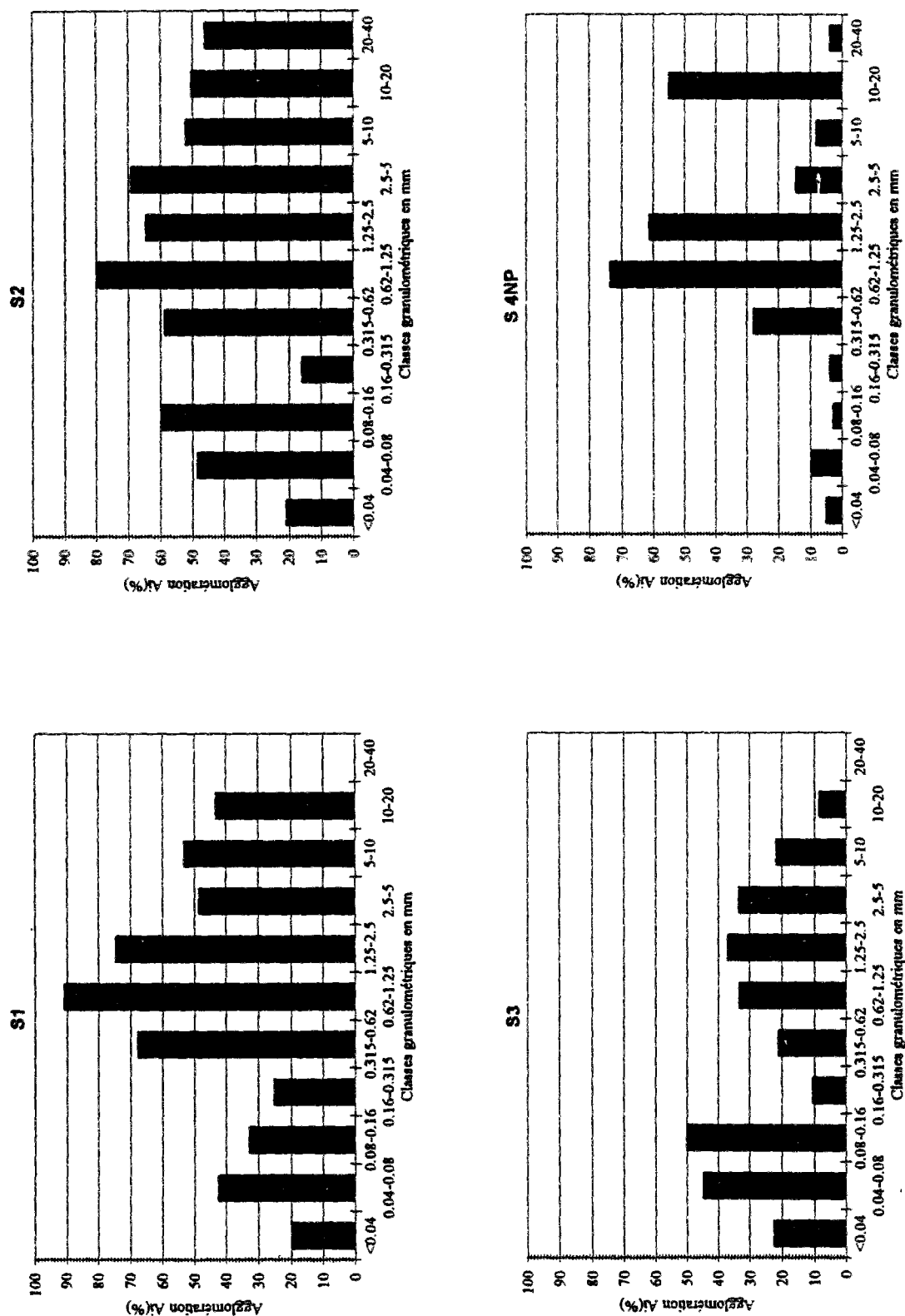


Figure II-12 : Représentation des différents taux d'agglomération des échantillons S1 S2 S3 et S4NP.

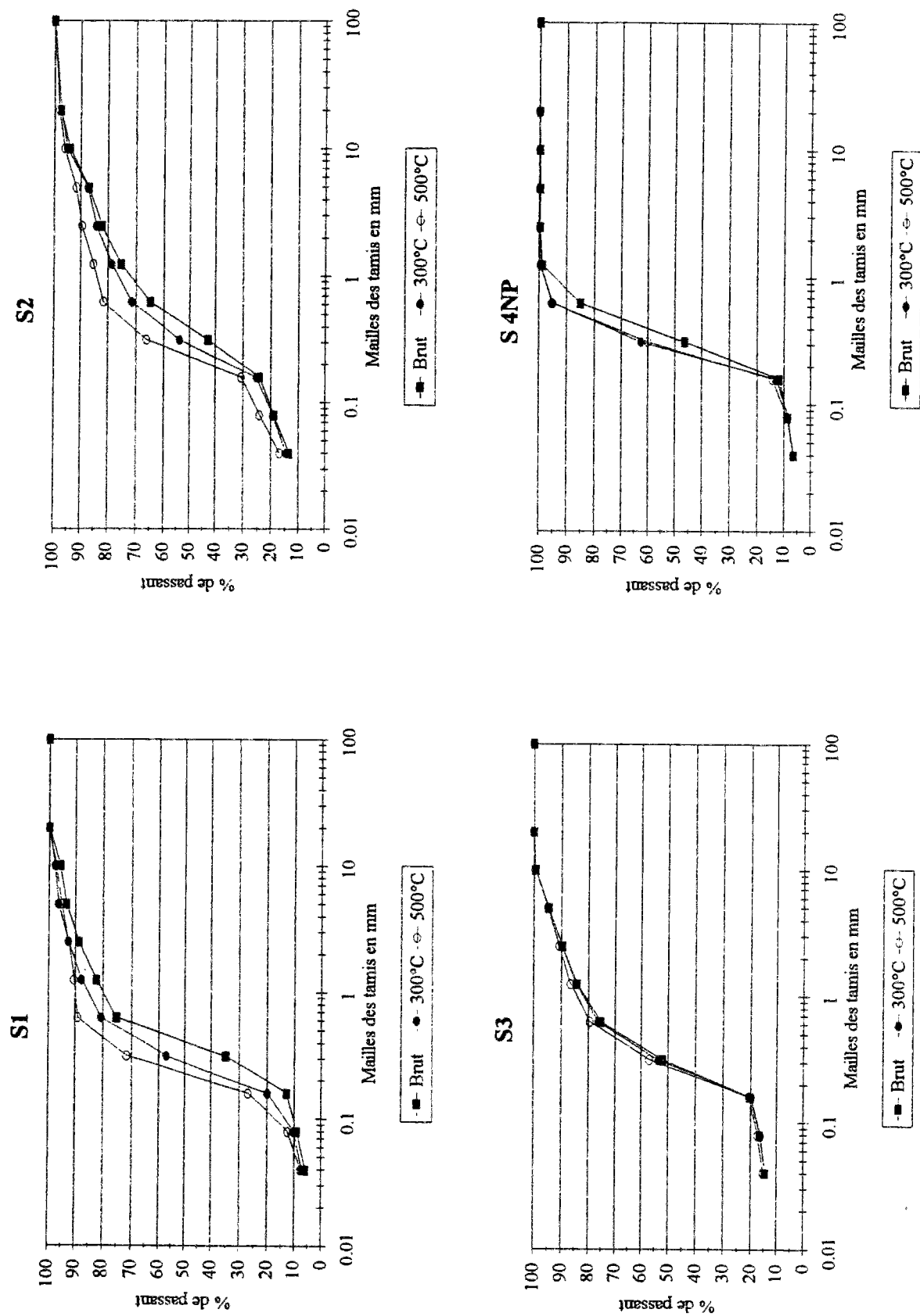


Figure II-13 : Courbes granulométriques obtenues avant et après traitement en laboratoire.

II.3.6. CONCLUSION

Cette étude a été réalisée sur quatre échantillons de sol issus d'un site gazier. Elle permet de caractériser en laboratoire la phase granulaire d'un sol contaminé par des goudrons de houille. Un mode opératoire a été conçu et utilisé pour la réalisation de cette étude. Celle-ci a permis de mettre en évidence un taux d'agglomération par le polluant goudron au sein de chaque fraction granulométrique des échantillons représentatifs du sol pollué.

Pour caractériser quantitativement cette répartition de la pollution au sein de chaque fraction granulométrique du sol, nous avons élaboré une méthode de cuisson des échantillons dans un four électrique à moufle, sous courant d'air, avec aspiration des gaz.

Pour obtenir, dans nos conditions expérimentales, une dépollution à peu près totale (à 90% environ), il faut chauffer les échantillons pendant 18 heures à 500°C. (2 heures à 500°C puis homogénéisation à la spatule, puis remise au four à 500°C pendant une nuit). Pour des températures inférieures à 500°C, la dépollution n'est que partielle.

Les résultats obtenus semblent montrer que l'échantillon de sol considéré, sur le terrain, comme non pollué, ne peut pas être considéré comme la référence du sol avant dépollution dans le cadre de notre étude. Il semble bien préférable de considérer le sol traité pendant 18 heures à 500°C comme représentatif du sol avant pollution (référence interne).

La pollution moyenne assimilée à la perte au feu à 500°C sur les trois échantillons de sol peut être ramenée à une valeur moyenne de 15.21% avec pour 100g de terre, 4.5g d'hydrocarbures relativement "légers" volatilisables avant 300°C, pour plus de la moitié localisés dans les fractions fines, et 10.7g en moyenne d'hydrocarbures lourds, volatilisables entre 300 et 500°C. Ceci devant être confirmé par un Rock Eval, pour une caractérisation en différents groupes.

Le polluant se comporte comme une "colle" et entraîne une agglomération moyenne du sol importante (environ 50% pour deux sols S1 et S2, 22% pour le troisième sol S3); les traitements thermiques ont pour effet de déstructurer les agrégats formés de goudrons et de grains, le résultat obtenu entraînant une modification des courbes granulométriques après chauffage pendant 18 heures à 500°C.

L'analyse, par classes granulométriques, d'une part des pertes au feu à 500°C et 300°C, et d'autre part, des taux d'agglomération, permet de bien caractériser à la fois l'importance, la nature, et l'allure de la pollution des sols par des goudrons.

CHAPITRE III

CARACTERISATION DU COMPORTEMENT MECANIQUE ET DE LA PERMEABILITE A L'EAU DE SOLS CONTAMINES PAR LES PRODUITS ISSUS DE LA PYROLYSE DE LA HOUILLE

Introduction

Nous tenterons de préciser l'influence de certains paramètres de mise en place des sols, sur les phénomènes de percolation de l'eau ainsi que les interactions "eau - sol pollué".

Nous décrivons dans une première partie les essais de perméabilité réalisés en cellule de percolation forcée avec contre pression latérale, puis, dans une seconde, les essais réalisés en colonnes, sans contre pression latérale.

Si la perméabilité est une des propriétés des sols la plus difficile à mesurer avec précision, c'est parce que les difficultés rencontrées sont dues en partie au régime non permanent d'écoulement régnant parfois dans le dispositif de mesure. De plus comme le soulignent CHAPUIS & AL (1990), l'essai de perméabilité ne fait l'objet d'aucune norme internationale, et de fait, le type d'appareillage et le mode opératoire peuvent varier d'un pays à l'autre, voire même d'un laboratoire à l'autre dans le même pays.

Pour la mise en oeuvre de nos essais, nous avons donc testé nos échantillons de sol en cellule de percolation forcée avec contrainte latérale, et en colonne, sous charge constante. Les dimensions des échantillons testés ont été maintenues constantes pour un appareil donné.

III.1. Essais de perméabilité en cellule de percolation à contre pression latérale.

III.1.1.Principe de l'essai.

L'essai consiste à faire passer, dans une cellule de percolation, de l'eau sous pression axiale constante, à travers un échantillon de sol humide, plus ou moins compacté, avec une contre-pression latérale légèrement supérieure à la pression axiale de façon à éviter les circulations parasites en bordure d'échantillon. L'injection de l'eau se réalise par le bas de l'échantillon et on mesure le débit d'eau traversant l'échantillon pour un gradient maintenu constant. Si l'échantillon n'est pas saturé d'eau au début de l'essai, on admet que la saturation d'équilibre de l'éprouvette est atteinte quand un volume d'eau équivalent à son volume de pore l'a traversé.

III.1.2. Description de l'appareillage utilisé

Le dispositif de percolation est représenté sur la figure III-1 :

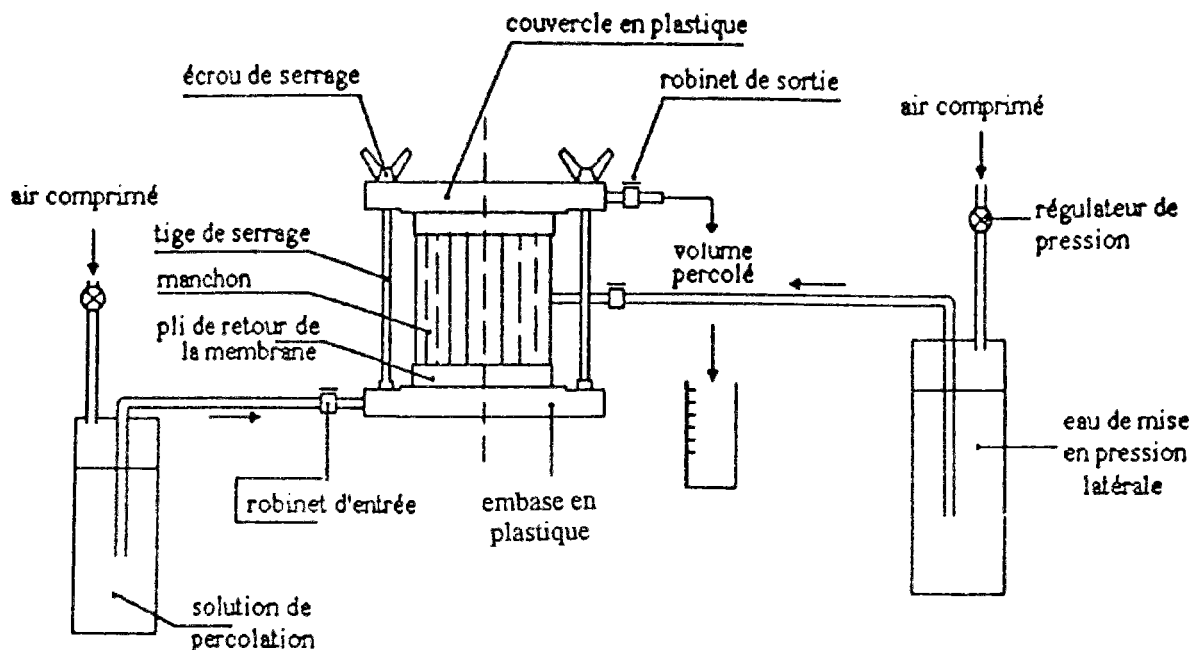


Figure III-1 : Schéma du dispositif de mesure de la perméabilité en cellule de percolation forcée à contre pression latérale.

Une cellule de perméabilité est constituée :

- d'un moule cylindrique contenant l'échantillon de dimensions : 80x80mm (80 de diamètre et 80mm de hauteur) ou 110x140mm.
- d'une embase et d'un couvercle munis de pierres poreuses entre lesquelles est placé l'échantillon.
- d'un dispositif d'alimentation d'eau sous pression permettant de maintenir constante la pression d'injection d'eau axiale P_1 , (en général $P_1 = 0.1 \text{ MPa}$) et la contre pression latérale ($P_2 = 0.01 \text{ MPa}$).

III.1.3. Préparation des échantillons et procédures opératoires des essais en cellule de percolation à contre pression latérale.

Deux modes opératoires ont été utilisés pour la réalisation de nos éprouvettes de sols :

- Le premier, a permis d'obtenir des échantillons directement placés en cellule; ceux-ci furent uniquement soumis à la vibration d'une tamiseuse, lors du remplissage du moule. Nous appelons par la suite ce mode opératoire, le "vibro-compactage simple".
- Le second, a permis de réaliser des éprouvettes de sol compacté dynamiquement en utilisant l'essai de compactage Proctor Normal. Il s'agissait d'obtenir des éprouvettes de sol cohérentes, de façon ensuite à simuler un écoulement au travers un échantillon compacté assez représentatif de l'état de compaction que l'on pourrait trouver in situ, en profondeur.

III.1.4.Procédures d'essai.

III.1.4.1.Mise en place par vibro-compactage.

L'échantillon est placé dans la cellule sans compactage :

- Sécher l'échantillon à l'air ambiant puis le tamiser à sec à la fraction granulométrique désirée.
- Humidifier le matériau à la teneur en eau désirée sur une surface de travail.
- Placer la membrane en latex dans le manchon du perméamètre.
- Plaquer la membrane sur le manchon par aspiration de l'air résiduel par le robinet latéral.
- Placer et fixer l'embase avec sa pierre poreuse, et le manchon munis de la membrane, sur une tamiseuse
- effectuer le remplissage sous vibration à l'aide du matériau préparé.
- fixer la pierre poreuse supérieure et le couvercle de la cellule.
- démarrer l'essai de perméabilité.

III.1.4.2.Mise en place par compactage dynamique et statique.

III.1.4.2.1.Principe de l'essai Proctor Normal.

L'essai Proctor est un essai normalisé (norme NF P 94-093) de compactage dynamique en laboratoire. Il consiste à laisser tomber, d'une hauteur de chute donnée, une masse sur le sol, mise en place par couches successives dans un moule cylindrique. Les caractéristiques de l'essai Proctor Normal sont données dans le tableau III-1.

	Essai Proctor Normal
Diamètre du moule	101.6 mm
Hauteur du moule	117 mm
Poids du mouton	2490 g
Hauteur de chute du mouton	305mm
Nombre de couches	3
Nombre de coups par couche	25
Poids approximatif d'une couche	650 g

Tableau III-1 : Caractéristiques générales de l'essai de compactage Proctor Normal.

Le sol considéré est humidifié à une teneur en eau donnée puis compacté. Pour chaque valeur de teneur en eau considérée, on détermine la masse volumique sèche du sol, et on établit la courbe des variations de cette masse volumique en fonction de la teneur en eau. Cette courbe dite "courbe Proctor" présente une valeur maximale de la masse volumique du sol sec qui est obtenue pour une valeur particulière de la teneur en eau. Pour que l'essai soit réalisé de façon satisfaisante, il faut que les teneurs en eau correspondant aux points expérimentaux soient à peu près également réparties de part et d'autre de la teneur en eau optimale tout en étant régulièrement espacées.

III.1.4.2.2.Descriptif de l'appareillage utilisé.

L'essai Proctor Normal s'effectue dans un moule de 101.6mm de diamètre lorsque le matériau passe entièrement au tamis de 5 millimètres. Le moule cylindrique comporte une hausse amovible, que l'on retire à la fin du compactage, afin d'araser le matériau à la hauteur du moule, 117mm.

III.1.4.2.3.Mode de calcul

Le poids du matériau compacté est déterminé par pesée, puis son poids spécifique humide γ_d est calculé, connaissant le volume du moule. On détermine une teneur en eau moyenne en prenant deux échantillons du sol, en les séchant à l'étuve à 105°C pendant 4 heures. La densité sèche peut alors être déterminée par la formule :

$$\gamma_d = \frac{\gamma_h}{1 + \frac{w}{100}}$$

avec : γ_h : densité humide de l'échantillon

γ_d : densité sèche de l'échantillon

w : teneur en eau exprimée en %

L'opération de compactage est répétée pour différentes teneurs en eau croissantes, afin d'étudier la relation liant la densité sèche γ_d à la teneur en eau w .

III.1.4.2.4.Résultats de l'essai Proctor

La courbe donnant les variations de la densité sèche γ_d en fonction de la teneur en eau w présente un maximum $\gamma_{d \max}$ pour une teneur en eau optimale w_{opt} . Il est possible de tracer ensuite l'hyperbole de saturation correspondant à un degré de saturation maximum égal à 1 selon l'équation suivante :

$$Sr = 1 = \frac{w}{100 \left(\frac{1}{\gamma_d} - \frac{1}{\gamma_s} \right)} \quad \rightarrow \quad \gamma_d = \frac{1}{\frac{1}{\gamma_s} + \frac{w}{100}}$$

Avec w : teneur en eau exprimée en %

γ_s : densité des grains solides

γ_d : densité sèche de l'échantillon.

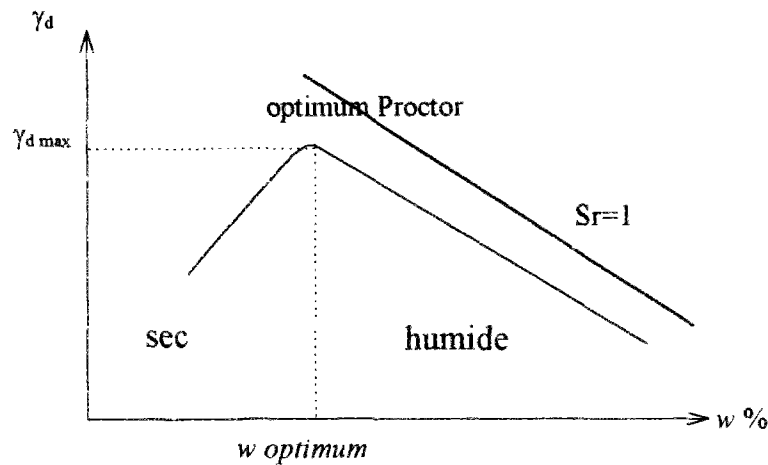


Figure III-2 : courbe Proctor normal

Si le "versant humide" (figure III-2) de la courbe Proctor, c'est à dire correspondant à des valeurs de teneur en eau supérieure à la teneur en eau optimale, n'est pas confondu avec l'hyperbole de saturation et lui reste à peu près parallèle, cela signifie que le compactage maximal ne correspond pas tout à fait à une expulsion totale de l'air et qu'il reste toujours de l'air emprisonné à l'intérieur de l'échantillon compacté.

Une notion très importante est traduite par la forme de la courbe. Une courbe Proctor caractérisant un sol sensible présentera une allure dite "aiguë", c'est à dire que, pour un faible écart de teneur en eau, la densité sèche obtenue, pourra être nettement inférieure à la densité maximale. En revanche, un sol caractérisé par une courbe plate présentera des densités sèches peu différentes de la densité sèche maximale, et de ce fait ce sol sera moins sensible aux variations de teneur en eau.

Des essais Proctor ont été réalisés sur des fractions granulométriques de deux types d'échantillon de sol, d'une part considéré, sur le terrain, comme non contaminé (S 4NP), et d'autre part, contaminé par les goudrons issu de la pyrolyse de la houille (S2). Dans les deux cas, les essais ont été réalisés dans le but de confectionner des éprouvettes en vue de l'étude de la perméabilité à l'eau des échantillons.

w (%)	8.14	10.32	13.25	14.40	15.31	16.32	18.89	23.23	29.2
γ_d	1.19	1.23	1.33	1.42	1.50	1.51	1.44	1.36	1.29

Tableau III-2 : Caractéristiques Proctor Normal de l'échantillon S2 pollué, fraction granulométrique inférieure à 2 millimètres $w_{opt}=16\%$

w (%)	10.8	13.04	14.50	16.75	18.42	21.9	26.31
γ_d	1.17	1.21	1.25	1.32	1.34	1.30	1.24

Tableau III-3 : Caractéristiques Proctor Normal des échantillons S2 pollué, fraction granulométrique (2-5) millimètres. $w_{opt}=18\%$.

w (%)	10.36	11.68	12.60	15.35	15.83	17.64	20.56	23.00	24.10	28.3
γ_d	1.63	1.64	1.65	1.63	1.66	1.64	1.63	1.60	1.62	1.59

Tableau III-4 : Caractéristiques Proctor Normal des échantillons S 4NP non pollué fraction granulométrique inférieure à 2 millimètres. $w_{opt}=16\%$

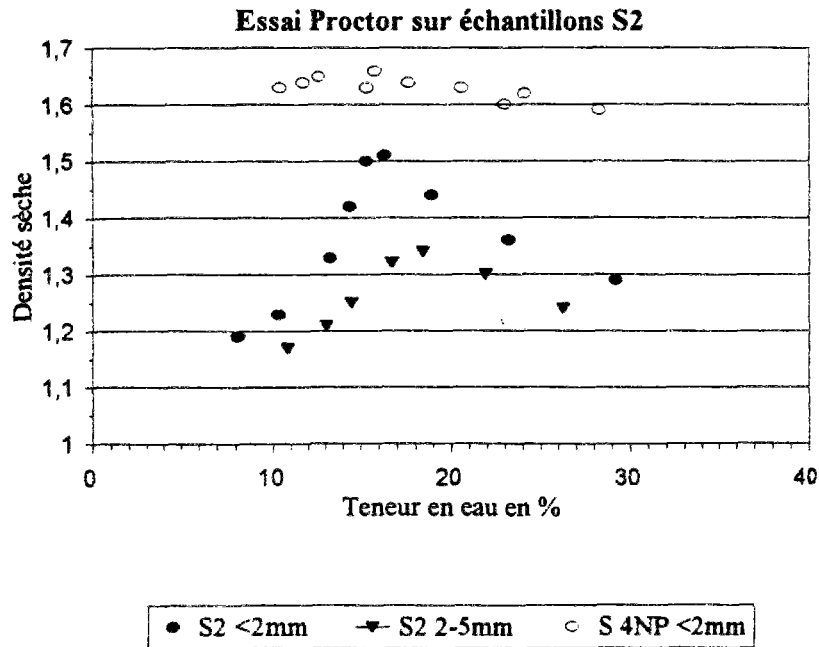


Figure III-3 : Courbes Proctor de quelques fractions granulométriques des échantillons S2 (pollué) et S 4NP (non pollué).

Les courbes Proctor sont représentées sur la figure III-3. Nous pouvons remarquer deux types particuliers de formes. L'essai Proctor réalisé sur du sable non contaminé présente une courbe "plate" avec $w_{opt}=16\%$. En revanche, en ce qui concerne les échantillons de sols pollués, même si les teneurs en eaux optimales varient peu ($w_{opt}=16\%$ pour la fraction granulométrique inférieure à 2mm et 18% pour la fraction 2-5mm), les courbes Proctor sont accentuées et "pointues" quelques soient les tailles granulométriques considérées. La sensibilité à l'eau, au compactage, du matériau contaminé par les goudrons de houille, est ainsi bien mise en évidence par cet essai. De plus, la différences de densités sèches obtenues après compactage à w_{opt} sont fortes quand on passe, pour des granulométries proches, du sable non pollué inférieure à 2mm ($w_{opt}=16\%$; $\gamma_d=1.66$), au sable pollué inférieure à 2mm ($w_{opt}=16\%$; $\gamma_d=1.51$) et surtout au sable pollué 2-5mm ($w_{opt}=18\%$; $\gamma_d=1.34$).

III.1.5. Conclusion

La méthode Proctor Normal de compaction dynamique des échantillons soumis ensuite aux essais de perméabilité permet d'obtenir des résultats de densité différents entre les échantillons. La compaction du sable non pollué S 4NP, donne une densité voisine de 1.65 pour une teneur en eau optimale de 16%; en revanche celles des échantillons S2 pollués diminue de 1.51 à 1.34 lorsque l'on passe d'une granulométrie inférieure à 2mm à celle comprise entre 2 et 5 mm.

Les courbes des échantillons S2 présentent une allure en pointe caractéristique d'une sensibilité importante à l'eau, autour de l'optimum Proctor qui se situe à 16 et 18% respectivement pour les fractions granulométriques testées (<2mm et 2-5mm). Le goudron présent dans ces échantillons pollués influe nettement sur les résultats obtenus.

III.1.5.1. Caractéristiques générales des échantillons soumis aux essais de perméabilité en cellule de percolation avec contre pression latérale.

Au total, quatorze essais de perméabilité en cellules de percolation forcée ont été réalisés sur les échantillons S2 de sol pollué issus du site S. Les caractéristiques de ces échantillons et leurs modes de mise en place dans les perméamètres sont récapitulés dans les tableaux III-5.

N° échantillons	1	2	3	4	5	6	7
Fractions granulométriques en mm	5-10	<10	<2	<2	<2	<2	<20
Mode de mise en place	VC10 1MPa	VC10 1MPa	VC10 1MPa	VC10	VC5	VC5	VC5
Ø échantillon en cm	7.8	7.8	7.8	8	8	8	8
Surface échantillon en cm ²	47.8	47.8	47.8	50.3	50.3	50.3	50.3
Hauteur compactée en cm	8	7.8	8.83	8.45	8	8	8
Volume en cm ³	382.3	372.7	421.9	424.7	402.1	402.1	402.1
Poids humide en grammes	682.4	677.4	608.8	772.0	446.3	666.6	482.7
Teneur en eau w%	13.14	18.64	20.58	23	5.45	21.89	10
Poids sec en grammes	603.2	571.0	504.9	627.6	423.2	546.9	438.8
Densité sèches ds	1.58	1.53	1.20	1.48	1.05	1.36	1.09

N° échantillons	8	9	10	11	12	13	14
Fractions granulométriques en mm	<20	<20	<20	<20	2-5	<2	<2
Mode de mise en place	VC5	VC5	VC5	R	PN	PN	PN
Ø échantillon en cm	8	8	8	10.16	10.16	10.16	10.16
Surface échantillon en cm ²	50.3	50.3	50.3	81.1	81.1	81.1	81.1
Hauteur compactée en cm	8	8	8	11.7	11.7	11.7	11.7
Volume en cm ³	402.1	402.1	402.1	948.6	948.6	948.6	948.6
Poids humide en grammes	517.6	648.0	523.0	436.4	1355.2	1663.2	1624.8
Teneur en eau w%	20.2	26.61	20.11	19.91	14.5	16.32	18.9
Poids sec en grammes	430.6	511.8	435.5	363.9	1188.8	1429.8	1366.5
Densité sèches ds	1.07	1.27	1.08	0.91	1.25	1.51	1.44

Tableaux III-5 : Caractéristiques des échantillons S2 de sol pollué soumis aux essais de percolation forcés avec contre pression latérale.

VC10+1MPa = mise en place par vibro-compactage simple + compression à la presse statique à 1MPa.

VC5 = mise en place par vibro-compactage simple.

R = simple remplissage de la cellule.

Les quatre premiers échantillons furent des essais préliminaires; c'est pourquoi, les dimensions des échantillons testés ne sont pas tout à fait identiques à celles des autres essais, car nous avons dû fabriquer des moules adéquats aux dimensions des cellules. Les dimensions des échantillons 12, 13, 14, correspondent aux essais réalisés après le compactage des échantillons à l'essai Proctor et sont normalisées.

III.1.6. Résultats des essais de percolation réalisés en cellule avec contre pression latérale.

Les échantillons furent testés sur différentes fractions granulométriques et modes de mise en place résumés dans les tableaux III-5.

Les graphiques se rapportant aux essais de perméabilités sont représentés sur les figures III-4 à III-7. Trois échantillons ont été mis en place par vibro-compactage puis compactés à la presse statique à 1MPa.

III.1.6.1. Essais de perméabilité réalisés sur sols vibro-compactés (simple) pendant 10 minutes, puis compactés sous presse statique à 1MPa.

III.1.6.1.1. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué (5-10mm). Echantillon n°1 (w=13.14%; ds=1.58).

Le compactage des agrégats de taille comprise entre 5 et 10mm à 1MPa nous donne une éprouvette très cohérente avec des agrégats soudés les uns aux autres. Les débits augmentent au cours de l'essai de 7 litres par heure en début d'essai pour une perméabilité égale à 9.10^{-6} m/s, à 15.6l/h puis diminuent ensuite à 9l/h pour se stabiliser jusqu'à 2h30 et chutent ensuite brutalement à 3.3l/h pour se stabiliser ensuite jusqu'à la fin de l'essai (5 heures).

III.1.6.1.2. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 10mm. Echantillon n°2 (w=18.64%; ds=1.53).

On constate un phénomène de diminution très sensible de la perméabilité qui chute de 1.10^{-6} m/s en début d'essai (débit=0,9l/h) à $2,8.10^{-7}$ (débit=0,2l/h) à 7,5 heures puis remonte jusqu'à $1,3.10^{-6}$ m/s soit un débit de 1l/h à 12 heures. Elle diminue ensuite assez régulièrement jusqu'à $1,2.10^{-7}$ m/s, et semble se stabiliser ensuite jusqu'au seizième jours autour de $1,2.10^{-7}$ m/s, ce qui correspond à des débits voisins de 0.1l/h.

III.1.6.1.3. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm. Echantillon n°3 (w=20.58%; ds=1.2).

La mise en place de l'échantillon sableux pollué de fractions granulométrique inférieur à 2mm à une teneur en eau de 20,58% fut beaucoup moins facile que celle des fractions 5-10mm et <10mm malgré la compaction à 1MPa. L'échantillon présente une forte teneur en eau et se met en place difficilement dans le moule du perméamètre.

L'évolution de la perméabilité se réalise de manière différente, en ce sens que durant les deux premiers jours la perméabilité diminue de 3.10^{-7} m/s à 2.10^{-7} m/s à t=7,5 heures, puis augmente alors brusquement à 6.10^{-7} m/s à 29,5 heures pour diminuer ensuite progressivement et assez rapidement jusqu'à atteindre, un palier autour de 4.10^{-8} m/s, à 16 jours. On peut remarquer qu'en fin d'essai, de nouvelles variations ont lieu avec des fluctuations entre le 16 et 20ème jour.

III.1.6.2.Essais de perméabilité réalisés sur sols uniquement vibro-compactés.

III.1.6.2.1.Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm. Echantillon n°4 (w=23%; ds=1.48).

La mise en place de l'échantillon dans la cellule, à une teneur en eau de 23% avec seulement 10 minutes de vibro compactage, sans compactage ultérieur à la presse, est encore moins évidente que pour les échantillons précédents: il se produit un phénomène "d'agglutination" en mottes, dû au rôle de l'eau qui colle les grains entre eux, et à la vibration mise en jeu lors du vibro compactage.

Au niveau des résultats, nous pouvons nous apercevoir que, dès le premier jour, la perméabilité chute légèrement en début d'essai de 2.10^{-7} m/s à $1,6.10^{-7}$ m/s avec des débits respectifs passant de 197ml/h à 144ml/h. Elle remonte ensuite et oscille autour de 3.10^{-7} m/s jusqu'au sixième jour puis augmente jusqu'au dixième jour d'essai, pour diminuer enfin jusqu'à la fin de l'essai autour de 9.10^{-8} m/s. Il semble que ces variations de perméabilité un peu anarchiques pourrait être l'indice d'une réorganisation de la disposition des grains en cours d'essai de percolation sous l'influence de la circulation d'eau.

III.1.6.2.2.Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm. Echantillon n°5 (w=5.45%; ds=1.05).

L'échantillon a été préalablement séché à l'air ambiant, puis placé directement dans la cellule et "vibro-compacté" pendant 5 minutes. On peut constater une chute brutale de la perméabilité de 2.10^{-5} m/s à 9.10^{-6} m/s dès le premier jour pour des débits respectifs de 30l/h en moyenne au début de l'essai à 8l/h après un jour de percolation, puis une diminution de la perméabilité oscillant irrégulièrement de 9.10^{-6} m/s à 5.10^{-6} m/s (débit moyen= 4,5l/h) tout au long de l'essai.

La faible teneur en eau de départ (w=5.5%) influe sur le comportement du matériau, qui, très foisonné au départ (ds=1.03), semble avoir une perméabilité comparable à celle d'un sable fin.

La chute brutale de perméabilité durant la première journée correspond probablement à une forte réorganisation des grains sous l'influence de la circulation de l'eau. Il est fortement probable que cette réorganisation se poursuit pendant toute la durée de l'essai ce qui expliquerait l'aspect chaotique de la courbe représentant l'évolution de la perméabilité après les phases successives de fermeture et de réouverture du circuit de percolation comme on peut le voir sur le graphique correspondant ou les phases d'arrêt des percolation sont toujours suivies d'une augmentation des débits brutale illustrant le fait d'un réajustement des grains non collés les uns autres contrairement aux essais effectués sur des échantillons plus compactés.

III.1.6.2.3.Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm. Echantillon n°6 (w=21.9%; ds=1.36).

La perméabilité chute d'abord de $3,8.10^{-8}$ m/s à 2.10^{-1} m/s pendant les quatre premiers jours puis augmente progressivement pour passer de 1.10^{-7} m/s à 17 jours, puis de nouveau varie en oscillant entre 1.10^{-7} m/s à $2,9.10^{-8}$ m/s en fin d'essai. Les débits quant à eux, de 30ml/h au début de l'essai diminuent à 20ml/h pendant le premier jour, puis diminuent régulièrement à 16ml/h jusqu'à t=4jours, augmentent ensuite à 18ml/h après remise en route de l'essai interrompu pour remplissage des réservoirs, puis diminuent de nouveau et se stabilisent ensuite autour de 17ml/h jusqu'à 6 jours.

On peut constater une nouvelle variation des débits vers une augmentation jusqu'à 120ml/h à 17 jours, puis une diminution à 90ml/h, pour ensuite fluctuer autour de 100ml/h à 20 jours et rechuter en fin d'essai à 30ml/h.

III.1.6.2.4. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 2mm VC5. Echantillon n°7 (w=10%; ds=1.09).

La perméabilité évolue, après une légère diminution en début d'essai de $5,7 \cdot 10^{-7}$ m/s à $4,6 \cdot 10^{-7}$ m/s, puis une augmentation à $9,8 \cdot 10^{-7}$ m/s à t=32 heures (débit= 888ml/h), vers une stabilisation moyenne entre 4 et 10 jours d'essai à $4,7 \cdot 10^{-7}$ m/s pour des débits moyens de 425ml/h.

Une augmentation brutale de la perméabilité et du débit est à noter au dixième jour où ceux-ci se chiffrent respectivement à $7 \cdot 10^{-7}$ m/s et 630ml/h alors que la moyenne précitée est de $4 \cdot 10^{-7}$ m/s et un débit moyen de 425ml/h.

III.1.6.2.5. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 20mm VC5. Echantillon n°8 (w=20.20%; ds=1.07).

L'échantillon est laissé à tremper totalement dans l'eau pendant 24 heures puis est soumis à l'essai de percolation.

La perméabilité est faible et varie de $\approx 6 \cdot 10^{-8}$ m/s en début d'essai, diminue légèrement à $3,5 \cdot 10^{-8}$ m/s pendant les cinq premiers jours, augmente légèrement en milieu d'essai à $6,5 \cdot 10^{-8}$ m/s et semble se stabiliser aux alentours de $7,8 \cdot 10^{-8}$ m/s en fin d'essai. Les débits diminuent durant les cinq premiers jours de 53ml/h en début d'essai à 30ml/h à 5 jours puis augmentent jusqu'à 61ml/h à 10 jours. Une augmentation notable peut être observée au treizième jour lors de la recharge des réservoirs d'eau, où les débits passent à 85ml/h. Ceux ci oscillent ensuite entre 86 et 60ml/h sur la fin de l'essai.

III.1.6.2.6. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 20mm VC5. Echantillon n°9 (w=26.61%; ds=1.27).

La perméabilité évolue faiblement et régulièrement sur l'ensemble de la durée de l'essai, passant de $8 \cdot 10^{-9}$ m/s en début d'essai et se stabilisant aux alentours de 4 à $5 \cdot 10^{-9}$ m/s en fin d'essai. Pour des débits diminuant très peu de 7 à 8 ml/h en début d'essai à 5ml/h en fin d'essai.

III.1.6.2.7. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 20mm VC5. Echantillon n°10 (w=20.1%; ds=1.08).

Pour ce matériau très foisonné (ds=1.08) et de granulométrie inférieure à 20mm, nous pouvons observer une forte diminution du coefficient de perméabilité qui en début d'essai passe de $1 \cdot 10^{-5}$ m/s à $1 \cdot 10^{-6}$ m/s pour des débits respectifs de 13l/h à ≈ 930 ml/h dès les premières heures de l'essai (t<12,5heures). La perméabilité diminue ensuite plus lentement jusqu'à $4 \cdot 10^{-8}$ m/s (débit : 36m/h) à t=10 jours, puis augmente entre 10 et 14 jours à $9 \cdot 10^{-8}$ m/s (débit : 84ml/h) puis diminue de nouveau aux environs de $3.6 \cdot 10^{-8}$ m/s (débit moyen 40ml/h) entre 16 et 20 jours pour augmenter à $8 \cdot 10^{-8}$ m/s entre 21 et 25 jours et diminuer en fin d'essai à $2,2 \cdot 10^{-8}$ m/s (débit: 20ml/h).

III.1.6.2.8. Résultats d'essai de perméabilité effectué sur la fraction de sol pollué inférieure à 20mm par simple remplissage. Echantillon n°11 (w=19,9%; ds=0,91).

Pour ce matériau très foisonné (ds=0,91), pendant les deux premiers jours, la perméabilité augmente de 1,7 à 8.10^{-7} m/s puis elle diminue sensiblement pour passer de 10^{-7} m/s à t=5 jours à 4.10^{-8} m/s en moyenne sur les derniers jours d'essai. Les débits passent de 250ml/h pendant les trois premiers jours à environ 35ml/h les derniers jours d'essai.

L'ensemble des résultats peut être récapitulé dans les tableaux III-6 à III-8. Les résultats sont présentés sous forme de moyennes globales pour l'ensemble des tests réalisés.

Référence échantillon	1	2	3
Fraction granulométrique (mm)	5-10	<10	<2
Mode de mise en place	VC10-1MPa	VC10-1MPa	VC10-1MPa
Perméabilité moyenne sur la totalité de l'essai en m/s	1.10^{-5}	5.10^{-7}	2.10^{-7}
Débit moyen total en l/h	8.5	0.4	0.1
Volume total écoulé en litres	31	70	29
Durée de l'essai en jours	0.2	16	20

Tableau III-6 : Récapitulatif des résultats obtenus pour les échantillons 1, 2, 3 testés en cellule de percolation forcée avec contre pression latérale.

Référence échantillon	4	5	6	7
Fraction granulométrique (mm)	<2	<2	<2	<20
Mode de mise en place	VC10	VC5	VC5	VC5
Perméabilité moyenne sur la totalité de l'essai en m/s	1.10^{-8}	8.10^{-5}	4.10^{-8}	5.10^{-7}
Débit moyen total en l/h	0.2	7.5	0.04	0.5
Volume total écoulé en litres	50	718	36	146
Durée de l'essai en jours	14	10	30	14

Tableau III-7 : Récapitulatif des résultats obtenus pour les échantillons 4, 5, 6, 7 réalisés en cellule.

	8	9	10	11
Fraction granulométrique (mm)	<20	<20	<20	<20
Mode de mise en place	VC5	VC5	VC5	R
Perméabilité moyenne sur la totalité de l'essai en m/s	6.10^{-8}	6.10^{-9}	8.10^{-7}	1.10^{-7}
Débit moyen total en l/h	0.1	0.006	0.74	0.1
Volume total écoulé en litres	24	2	77	52
Durée de l'essai en jours	20	14	28	31

Tableau III-8 : Récapitulatif des résultats obtenus pour les échantillons 8, 9, 10, 11 réalisés en cellule.

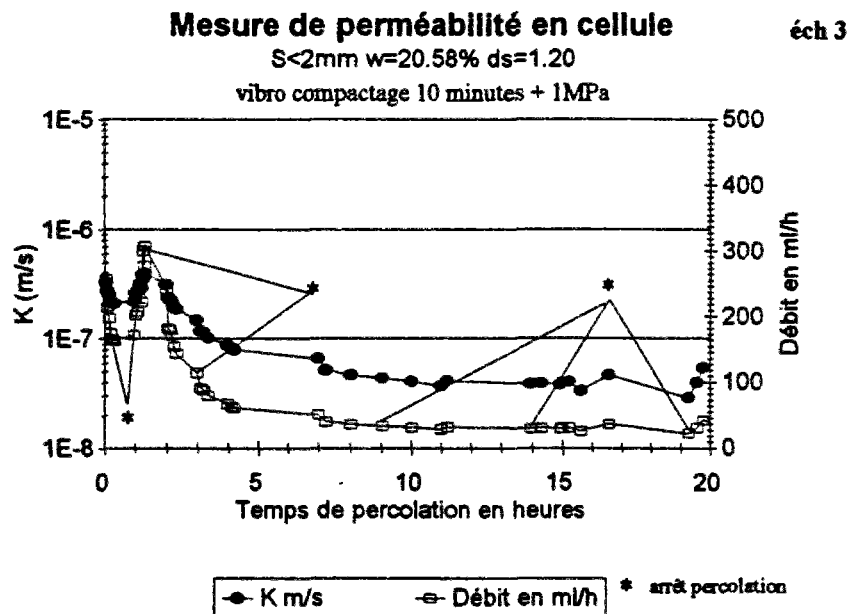
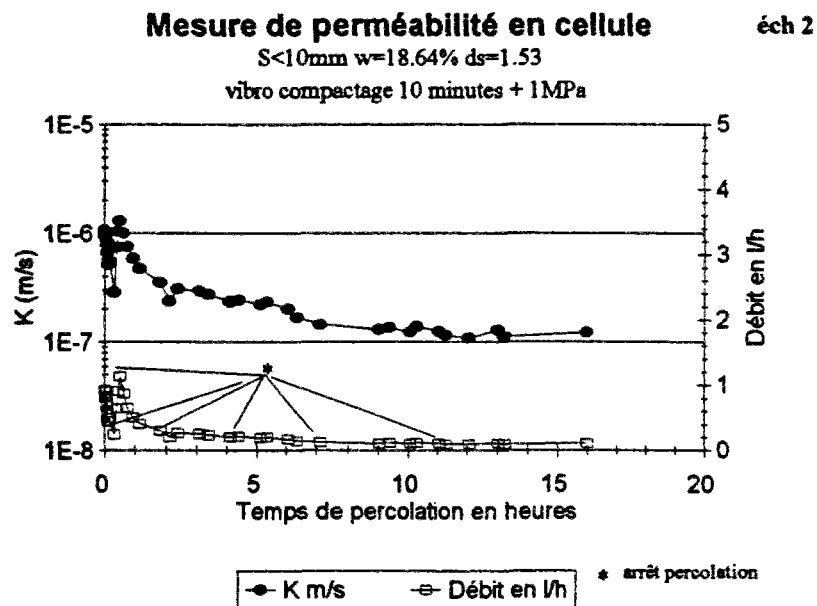
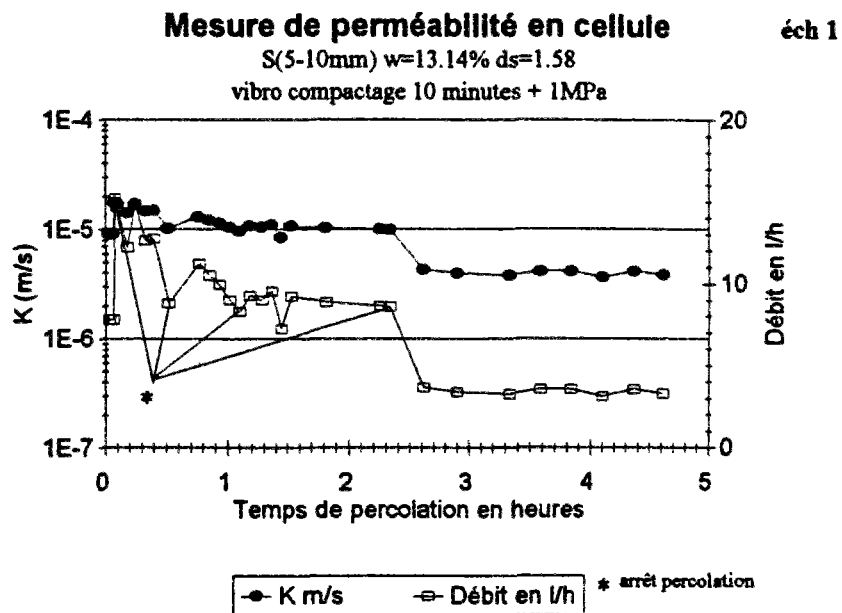


Figure III-4 : Perméabilité des essais effectués en cellule de percolation, échantillons 1,2,3.

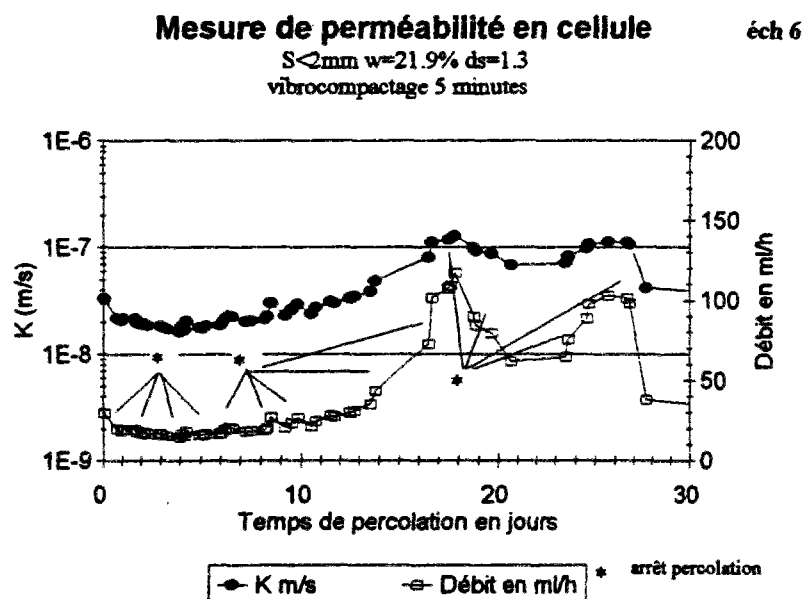
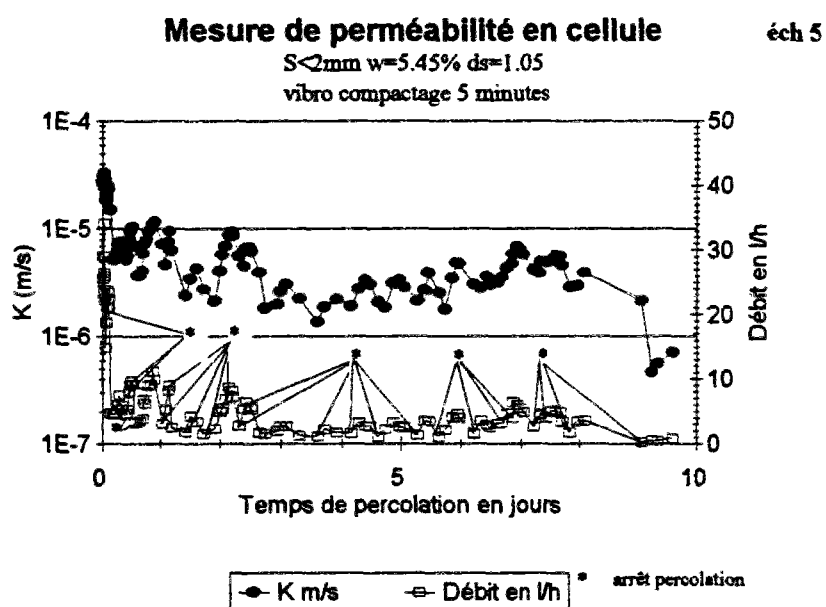
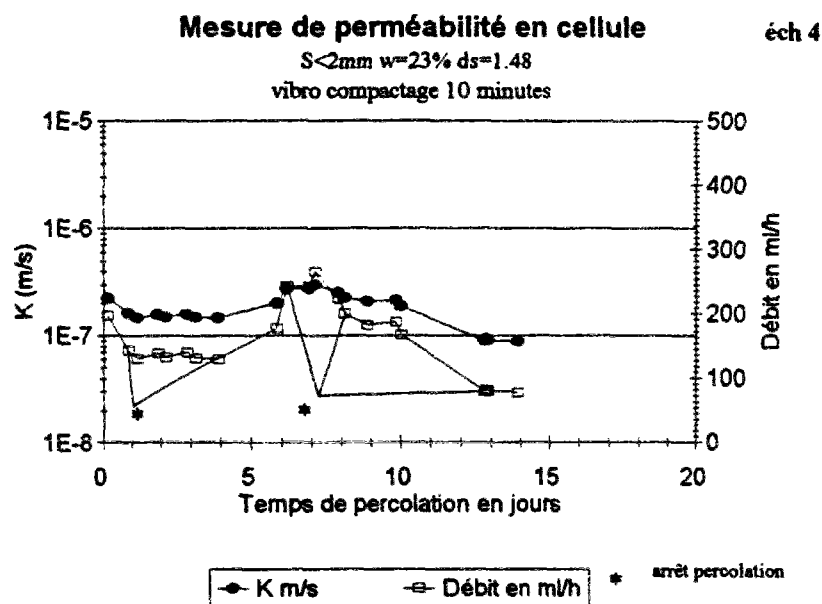


Figure III-5 : Perméabilité des essais effectués en cellule de percolation, échantillons 4, 5, 6.

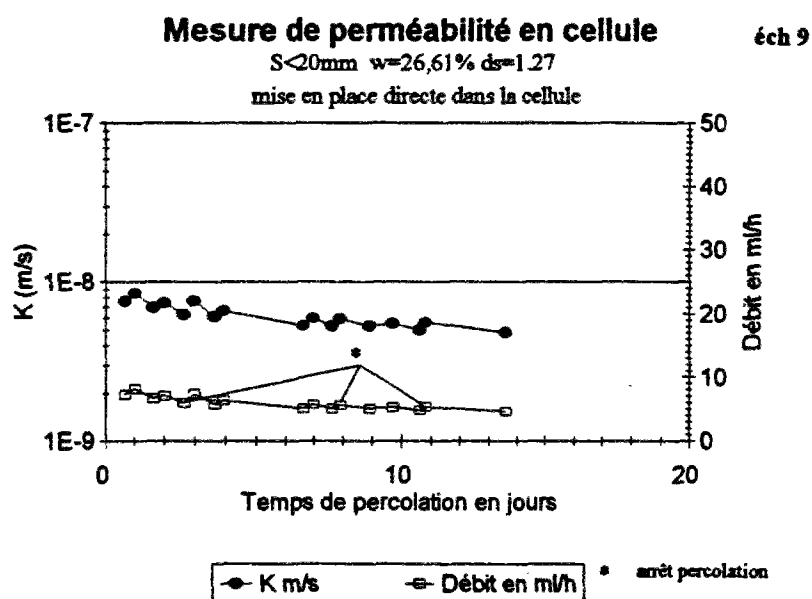
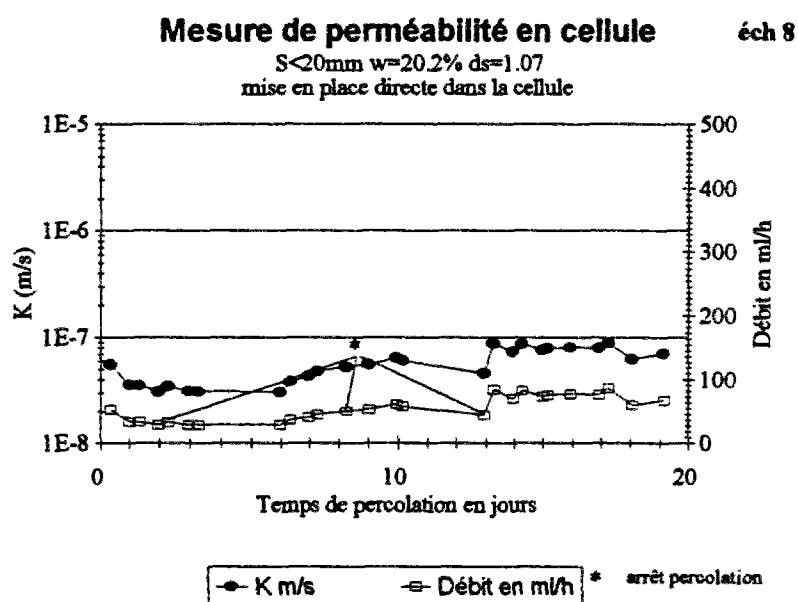
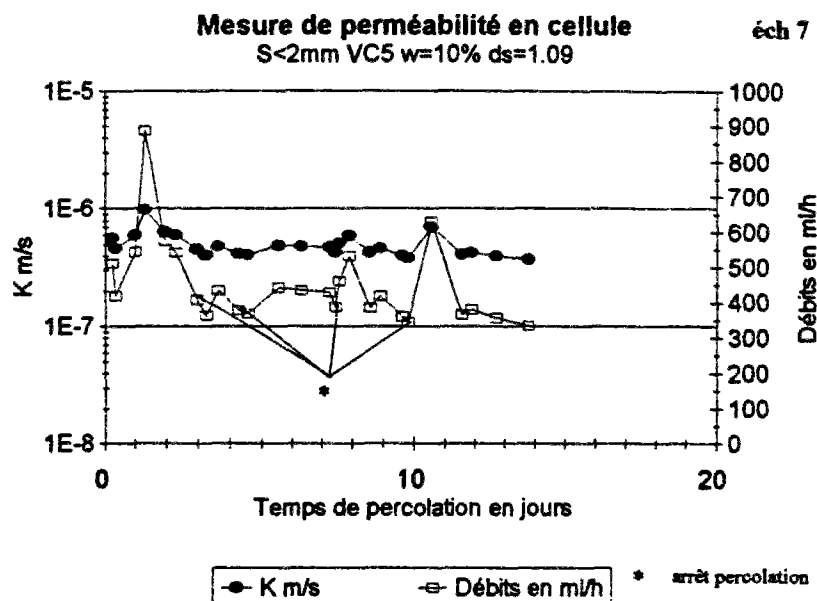


Figure III-6 : Perméabilité des essais effectués en cellule de percolation, échantillons 7, 8, 9.

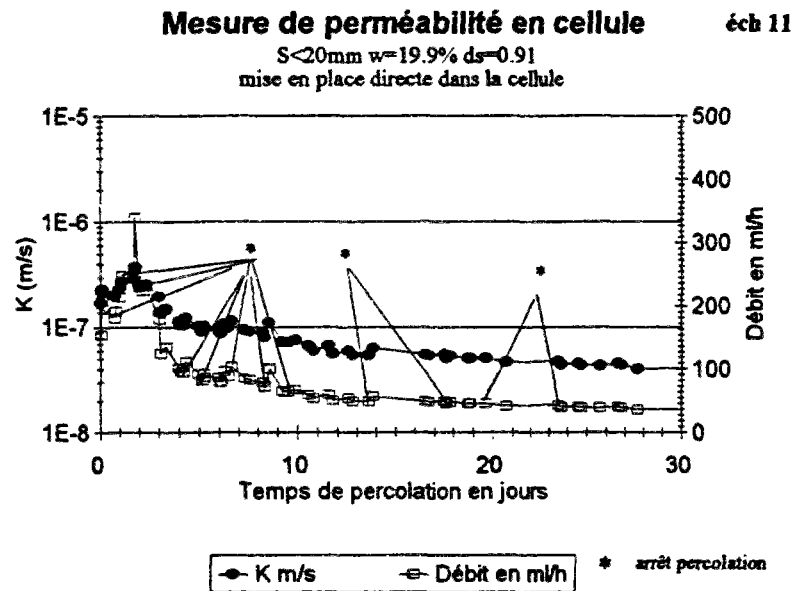
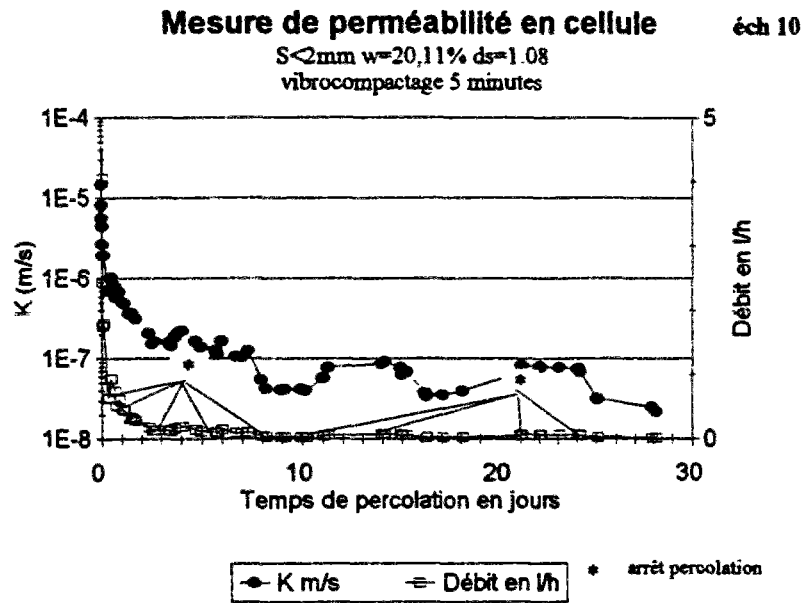


Figure III-7 : Perméabilité des essais effectués en cellule de percolation, échantillons 10, 11.

III.1.7.Essai de perméabilité sur trois échantillons compactés à l'énergie Proctor.

Trois essais de perméabilité furent réalisés sur des échantillons de sols S2 pollués, à différentes teneurs en eau de granulométries de mises en place différentes. Un essai a été effectué sur un échantillon de sable pollué de la fraction granulométrique 2-5mm, et deux autres essais ont été réalisés sur des échantillons de sables de granulométrie inférieure à 2 mm.

Les caractéristiques de mise en place des échantillons sont résumées sur tableau III-9.

Echantillons	12	13	14
Nature et Granulométrie en mm	S2 pollué 2-5	S2 pollué <2	S2 pollué <2
Teneur en eau initiale de mise en place	14.5	16.3	18.9
Perméabilité moyenne en m/s	$2.5.10^{-7}$	$1.8.10^{-7}$	$2.6.10^{-8}$
Débit moyen en ml/h	246	136	26
Volume total écoulé en litres	114	80	12
Durée totale de l'essai en jours	20	20	20
Densité sèche	1.25	1.51	1.44

Tableau III-9 : Caractéristiques des essais de perméabilité réalisés sur des échantillons S2 de sols pollués compactés dynamiquement à l'essai Proctor Normal.

III.1.7.1.Analyse et commentaire des résultats obtenus.

III.1.7.1.1.Echantillon n°12 (2-5 mm ; w=14.5%)

En analysant la figure III-8-1), nous pouvons constater que les débits, malgré le compactage dynamique induit lors de la mise en place, présentent une évolution relativement chaotique durant les 7 premiers jours avec des débits passant de 300 à 400ml/h puis évoluant ensuite après 7 jours d'essai vers une "stabilisation" autour de 200ml/h mais toujours avec des oscillations nettes.

La perméabilité moyenne de l'échantillon n°12 est de l'ordre de $2,5.10^{-7}$ m/s sur la durée totale de l'essai (20 jours).

III.1.7.1.2.Echantillon n°13 (<2mm ; w_{opt})

La Figure III-8-2) montre que les débits et les perméabilités diminuent globalement en fonction du temps, mais que dans les premiers jours d'essais, il se produit des variations notables puisque les débits passent de 280ml/h ($k=2,8.10^{-7}$ m/s) à 200ml/h ($k=2,10^{-7}$ m/s) puis augmentent de nouveau jusqu'à 300ml/h à 2 jours d'essai, pour diminuer ensuite assez régulièrement jusqu'à 100ml/h en moyenne ($k=10^{-7}$ m/s) jusqu'à la fin de l'essai.

III.1.7.1.3.Echantillon n°14 (<2mm ; w=18.9%)

Contrairement aux autres échantillons (12 et 13) décrits précédemment, la Figure III-8-3) montre une évolution relativement constante et stabilisée des débits et perméabilités autour de 26ml/h et $2,5.10^{-8}$ m/s.

Néanmoins, à seulement deux points en moins en teneur en eau initiale de mise en place, ces valeurs de débits et de perméabilités sont largement inférieures à celles obtenues pour les mêmes conditions d'essai entre l'échantillon 12 et 13.

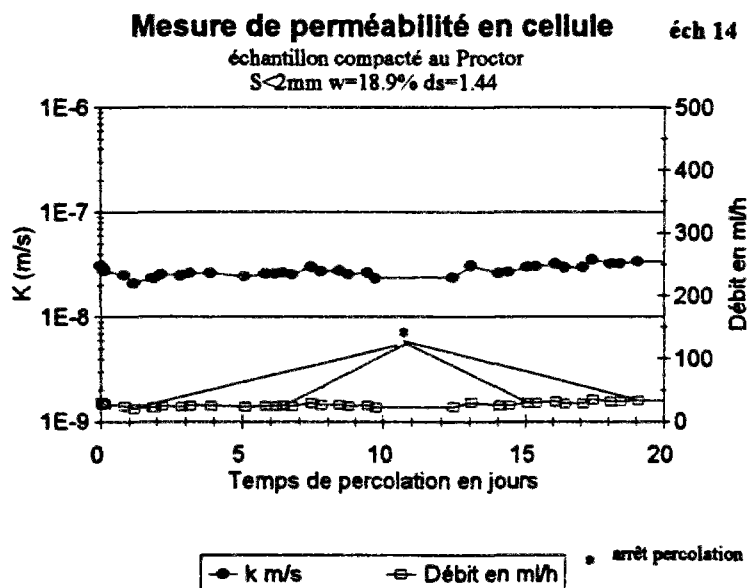
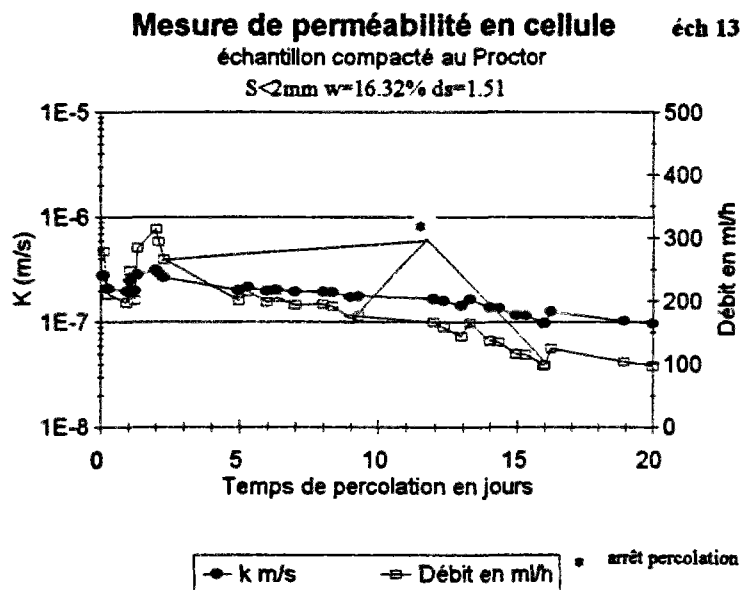
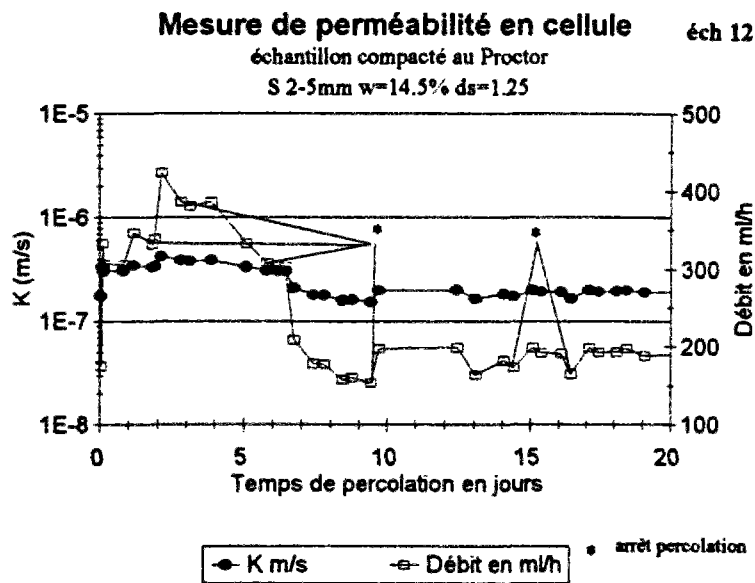


Figure III-8 : Mesures des perméabilités obtenues en cellule de percolation forcée sur les échantillons compactés dynamiquement à l'essai Proctor Normal. 1) Mesure perméabilité échantillon 12, fraction 2-5mm. 2) Mesure perméabilité échantillon 13, fraction <2mm. 3) Mesure de perméabilité échantillon 14 fraction <2mm.

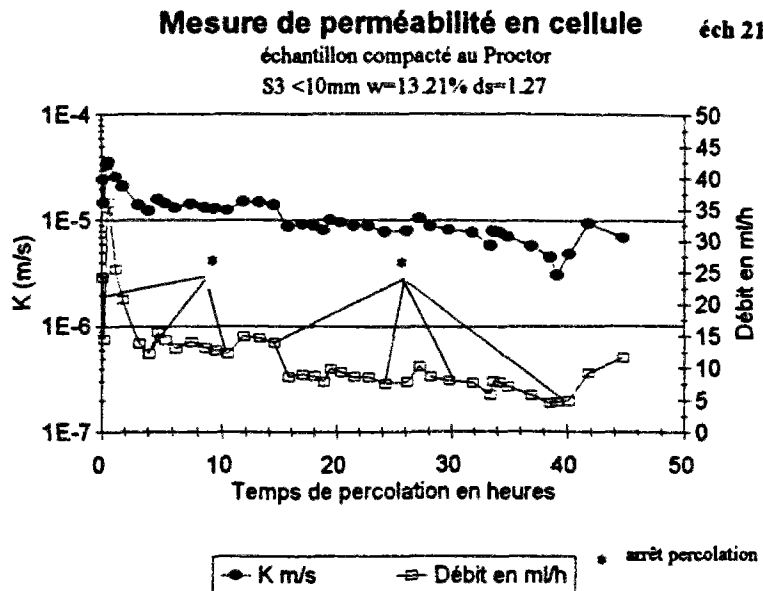


Figure III-9 : Mesures des perméabilités obtenues en cellule de percolation forcée sur un échantillon foisonné (éch 21)

III.1.7.1.4. Echantillon n°21 (<10mm; w=13,21%)

Les mesures effectuées sur cet échantillon 21 mis en place dans un moule Proctor par simple remplissage ont été réalisées pour l'analyse chimique (voir chapitre suivant). Néanmoins nous pouvons remarquer une tendance générale de diminution des perméabilités mesurées en fonction du temps, et ce, même si l'essai n'a duré que 46 heures. Elles passent de $4 \cdot 10^{-5}$ à $8 \cdot 10^{-6}$ m/s.

III.1.7.2. Conclusion

Le tableau III-9 résume les caractéristiques comparatives des échantillons testés. Nous pouvons constater que les valeurs de perméabilité obtenues sont près de 10 fois plus faibles pour l'échantillon 14 comparativement à l'échantillon 13. Les débits moyens totaux calculés sur la durée totale de l'essai (20 jours) sont 7 fois plus faibles pour l'échantillon 14 que pour le 13, dans les mêmes conditions opératoires (Pression de percolation 0.4 bar, t° ambiante, t° eau 17°C pression latérale 0.5 bar, granulométrie et charge en polluant (même échantillon)) hormis la teneur en eau de compactage : 18,9% pour l'échantillon 14 et 16,3% pour l'échantillon 13.

La comparaison des résultats obtenus pour les trois échantillons 12, 13, 14 préalablement compactés au Proctor, nous conduit à constater que la teneur en eau initiale de mise en place et de compactage a un rôle non négligeable dans l'évolution des résultats. Hormis les quelques irrégularités de débits constatées en début d'essai, dues vraisemblablement à une réorganisation interne des grains entre eux lors de la mise en circulation de l'eau sous pression, les résultats propres à ces échantillons montrent pour ces échantillons, qu'à différentes teneurs en eau initiales de mise en place, avoisinant la teneur en eau de l'optimum Proctor ($w_{opt}=16\%$), une tendance globale de diminution des débits et des perméabilités, en fonction du temps est observable. Les perméabilités restent faibles dans leur ensemble et oscillent autour de 10^{-7} m/s sur la durée totale de l'essai.

En revanche l'évolution des perméabilités est fortement diminuée d'un facteur 10 lorsque l'on passe de l'échantillon 13 à l'échantillon 14, et ce, dans les mêmes conditions d'essai, hormis la teneur en eau de compactage : 16.32% pour l'échantillon 13 et 18.9% pour l'échantillon 14. L'échantillon 14 présente des débits plus réguliers, et beaucoup plus faibles comparativement aux deux autres échantillons. L'influence de la teneur en eau initiale de mise en place de l'échantillon, seule caractéristique ayant été modifiée pour la réalisation de l'essai entre les deux échantillons, est ainsi bien mise en évidence.

D'autre part, le colmatage et le réarrangement des grains lors de la circulation d'eau, en fonction du temps est aussi bien mis en évidence lors de l'essai de percolation, et ce, quelque soit la taille granulométrique de l'échantillon considéré, les perméabilités et les débits diminuant globalement sur la totalité des essais.

A titre comparatif, il est intéressant de pouvoir sur la même période distinguer l'évolution des perméabilités, des débits et des quantités d'eau percolées mises en jeu. Cette comparaison peut se faire sur les tableaux III-10.

Référence échantillon	2	3	4	5	6	7
Fraction granulométrique (mm)	<10	<2	<2	<2	<2	<20
Mode de mise en place	VC10 1MPa	VC10 1MPa	VC10	VC5	VC5	VC5
Perméabilité moyenne sur la totalité de l'essai en m/s	5.10^{-7}	2.10^{-7}	1.10^{-8}	8.10^{-6}	8.10^{-9}	5.10^{-7}
Débit moyen total en l/h	0.40	0.10	0.20	7.50	0.02	0.50
Volume total écoulé en litres	63	24	50	718	7	137
Teneur en eau de mise en place %	18.6	20.6	23	5.45	21.9	10
Densité sèche ds	1.53	1.20	1.48	1.05	1.36	1.09
Durée de l'essai en jours	14	14	14	10	14	14

Référence échantillon	8	9	10	11	12	13	14	21
Fraction granulométrique (mm)	<20	<20	<20	<20	<2	<2	<2	<10
Mode de mise en place	VC5	VC5	VC5	R	PN	PN	PN	R
Perméabilité moyenne sur la totalité de l'essai en m/s	5.10^{-8}	6.10^{-9}	1.10^{-6}	1.10^{-7}	2.10^{-7}	2.10^{-7}	2.10^{-8}	1.10^{-5}
Débit moyen total en l/h	0.05	0.006	1.02	0.13	0.30	0.20	0.03	13
Volume total écoulé en litres	114	2	61	35	86	65	8	372
Teneur en eau de mise en place %	20.2	26.61	20.11	20	14.5	16.32	18.9	13.21
Densité sèche ds	1.07	1.27	1.08	0.91	1.25	1.51	1.44	1.27
Durée de l'essai en jours	14	14	14	14	14	14	14	1.9

Tableaux III-10 : Comparatif des résultats obtenus pour 14 jours d'essai (sauf échantillon 21).

III.2. Essais de perméabilité sur colonne, sans contre pression latérale.

III.2.1.Principe de l'essai

L'essai consiste à faire percoler de l'eau de haut en bas, par gravité, à travers un échantillon de sol préalablement placé dans une colonne de verre.

Cinq colonnes furent montées sur un banc d'essai réalisé au laboratoire, permettant des essais simultanés. Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure III-10. Les caractéristiques sont données dans le tableau III-11 :

Hauteur d'eau constante au dessus de l'échantillon Δh		47.5cm
Echantillon	Hauteur	15.5cm
	diamètre	9.5cm
	Section	70.9cm ²
Gradient $\Delta h/h$		3.06

Tableau III-11 : Caractéristiques du dispositif utilisé pour l'essai de perméabilité sur colonnes

III.2.2.Dispositif expérimental.

Le niveau d'eau à l'intérieur des colonnes, au dessus des échantillons, est maintenu constant à l'aide d'un déversoir situé en amont de la colonne, relié au système d'évacuation des eaux. Le système de mise en eau peut se réaliser à la fois par le bas ou par le haut de la colonne, suivant le mode de remplissage choisi.

III.2.3.Mode de remplissage des échantillons de sol

Les procédures de mise en place des échantillons sont schématisées en figure III-11. Le remplissage d'une colonne peut se réaliser de deux manières:

- La première consiste à remplir par le haut la colonne vide, en versant le sable pollué sec de la fraction granulométrique choisie à l'aide d'un entonnoir, jusqu'à la hauteur d'échantillon désirée. La mise en eau de la colonne s'effectue ensuite par le bas en veillant bien à ce que le remplissage se réalise lentement sous peine de voir la colonne de sable se soulever. L'existence d'air résiduel emprisonné au sein de la matrice sableuse est favorisé par cette méthode;
- Le second mode de remplissage dit par "fluidisation" (RASOLOFONIAINA, 1985), consiste à remplir d'eau la colonne et à verser le sable par le haut de la colonne. Cette méthode permet d'individualiser les agrégats lorsque ceux ci sont versés dans l'eau. Un léger brassage à l'aide d'une tige en verre permet d'homogénéiser le milieu, les bulles d'air piégées dans la matrice sableuse étant ainsi éliminées au mieux; mais ce type de méthode favorise un certain granoclassement par sédimentation.

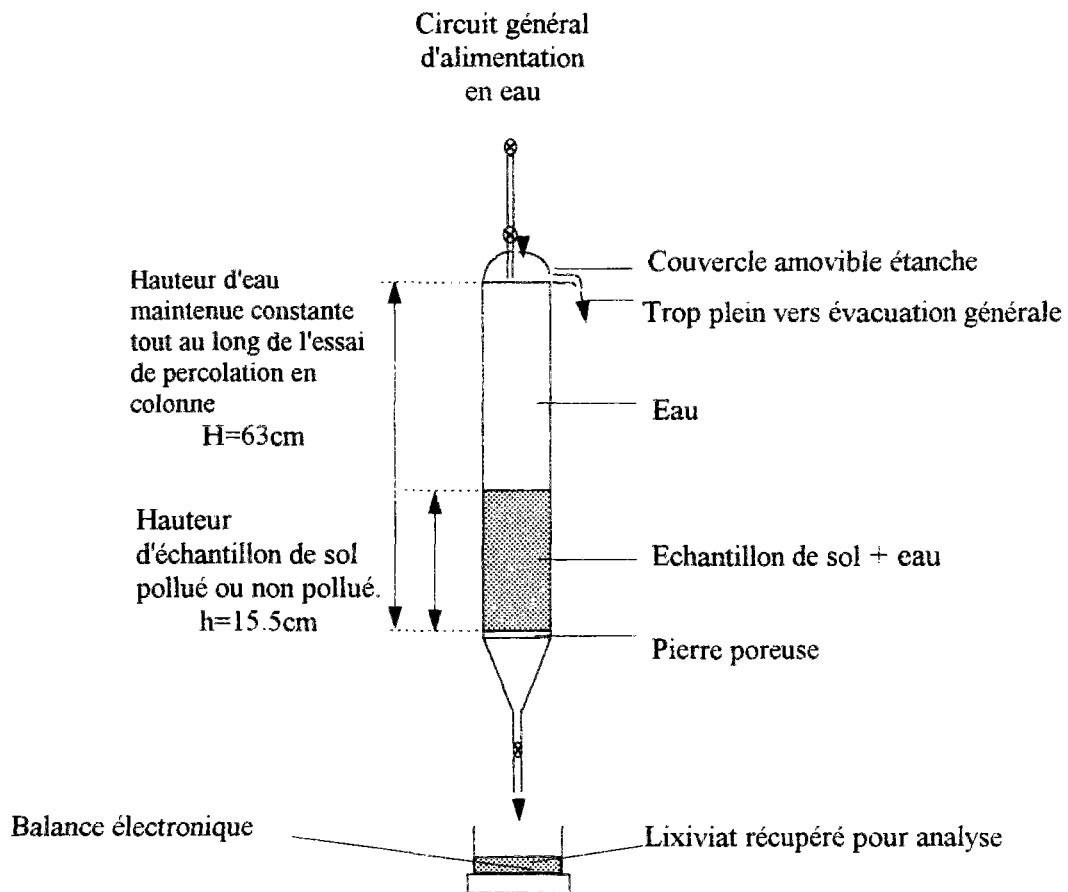


Figure III-10 : Dispositif expérimental utilisé pour les essais de mesure de perméabilité sur colonnes à charge constante.

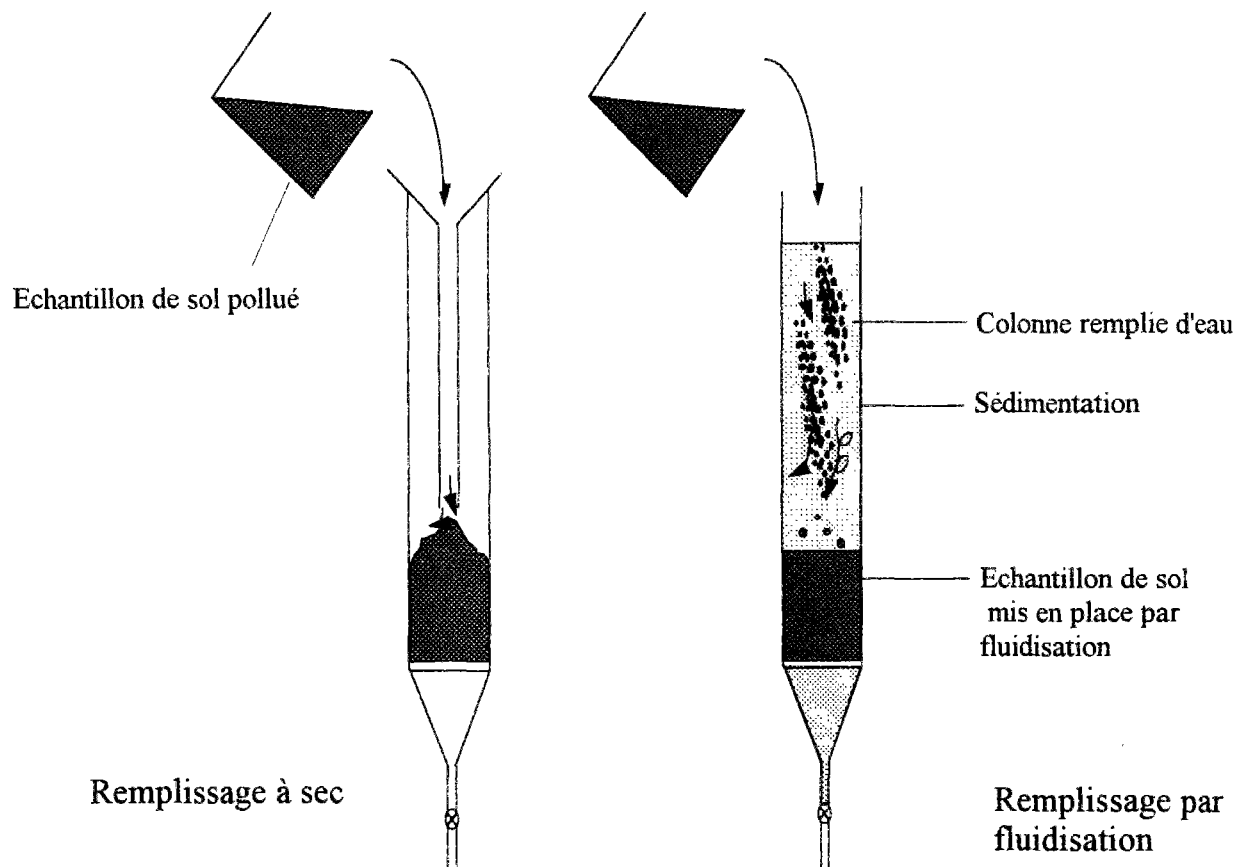


Figure III-11 : Modes de remplissage des colonnes de percolation.

Six essais ont été réalisés sur les sols S, en utilisant d'une part, la terre S non polluée S4 NP, et d'autre part des échantillons de terre polluée S3 de diverses tailles granulométriques, dont deux échantillons de terre polluée qui ont été préalablement traités à l'aide d'un surfactant et d'un oxydant. Les caractéristiques de mise en place des échantillons de ces deux séries d'essais en colonnes sont données sur le tableau III-12.

	Série 1 (<2mm)			Série 2 (<10mm)		
Echantillons	15	16	17	18	19	20
Nature échantillon	non pollué	non pollué	pollué	pollué	pollué	pollué
Granulométrie	<2mm	<2mm	<2mm	<10mm	<10mm	<10mm
Mode remplissage	sec	fluidisation	fluidisation	fluidisation	fluidisation	fluidisation
Prétraitement	non	non	non	non	Surfactant	Oxydant

Tableau III-12 : Caractéristiques de mise en place des échantillons pour les essais en colonnes.

Les échantillons de la série d'essais 1 ont été homogénéisés et tamisés à 2mm, qu'il s'agisse de la terre polluée ou non polluée. Les échantillons de la série d'essais n°2 sont issus du même lot de prélèvement S3, mais la terre fut tamisée à 10mm, puis homogénéisée, et enfin répartie en trois lots identiques; un échantillon de terre fut destiné à un essai direct de perméabilité à l'eau, tandis que les deux autres lots ont subi un pré-traitement à l'aide d'agents chimiques.

III.2.3.1. Pré-traitement des terres contaminées.

La dégradation des HAP est souvent limitée par une faible solubilité dans l'eau. En effet, cette biodégradation et le taux de dégradation dépendent du taux de transfert massique des HAP de la phase solide vers la phase liquide.

L'utilisation de produits tels que les surfactants ou les oxydants a été testée par de nombreux auteurs, dans le but d'augmenter la biodisponibilité des HAP. Ainsi, l'emploi de surfactants permet de solubiliser ces composés organiques hydrophobes peu solubles dans l'eau (LUTHY et Al, 1993) et ainsi d'augmenter la disponibilité de ces molécules aux agents microbiens (GOURDON, 1995). L'utilisation d'oxydant permet de réduire la taille moléculaire de ces polluants par ruptures des cycles benzéniques.

III.2.3.1.1. Pré-traitement par surfactant de l'échantillon de terre contaminé.

Pour nos essais, le surfactant utilisé est le Triton X-102, surfactant non-ionique dont les caractéristiques figurent dans le tableau III-13.

Surfactant	Formule chimique	Poids moléculaire	Densité
Triton X-102	$C_8H_{17}C_6H_{40}(CH_2CH_2O)_{12}H$	754 g.mol ⁻¹	1.06

Tableau III-13 : Caractéristiques du Triton X-102 (d'après TIEHM, 1994).

Une molécule type de surfactant (monomère) est composée de deux parties : une est hydrophile, et l'autre hydrophobe. Lorsqu'on ajoute des monomères d'un surfactant à l'eau, la tension de surface diminue au fur et à mesure que la concentration des monomères augmente, jusqu'à atteindre une concentration spécifique où la tension de surface cesse de diminuer. Ce stade correspond à la concentration micellaire critique (CMC), qui est caractéristique de chaque surfactant. Au dessus de cette concentration micellaire critique, les monomères s'arrangent en micelles, leur partie hydrophobe est orientée vers le centre de la micelle et leur partie hydrophile est tournée vers l'extérieur. La partie centrale de la micelle, hydrophobe, permet d'augmenter la concentration de composés hydrophobes tels que les HAP dans la phase aqueuse.

La conformation de la micelle ainsi constituée est représentée sur la Figure III-12; les HAP se logent à l'intérieur des micelles de surfactant qui forment une émulsion dans la phase aqueuse. Cette émulsion de surfactant dans l'eau est donc capable de dissoudre nettement plus de HAP que l'eau sans surfactant

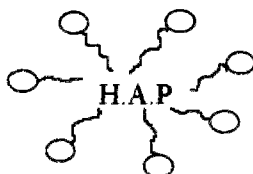


Figure III-12 : Disposition du contaminant au sein d'une micelle formée de surfactant.

Le Triton X-102 a été utilisé bien au dessus de la concentration micellaire critique (CMC) qui est de 4.10^{-4} moles.l⁻¹ (TIEHM, 1994), soit $3.024.10^{-2}$ % volume/volume (v/v). La littérature donne des valeurs proches de 0.1% v/v pour initialiser la solubilisation, et 1% v/v pour obtenir 70 à 90% de solubilisation.

Les ratios utilisés sont donc les suivants :

ratio sol/eau environ 1:2 (1.4 kg de terre pour 2.4 kg d'eau distillée)

ratio surfactant /eau 0.83% v/v ce qui correspond à 20ml de surfactant pour 2400ml d'eau. Cette concentration représente 28 fois la CMC.

III.2.3.1.2. Prétraitement de l'échantillon de terre avec le réactif de FENTON.

Pour cet essai, nous avons pré-traité la terre contaminée en utilisant le réactif de Fenton. Il s'agit d'un oxydant qui associe le peroxyde d'hydrogène (H₂O₂) et le sulfate de fer (FeSO₄). Le peroxyde peut participer à de nombreuses réactions radicalaires s'il est associé à un catalyseur afin d'activer la production de radicaux libres par rupture de la liaison peroxydique. Son activation conduit à la production d'entités radicalaires comme H₂O[•] et OH[•], qui ont une très grande affinité électronique et qui sont capables de réagir avec de nombreux composés aromatiques, dont les HAP. L'utilisation d'un oxydant doit donc permettre de réduire la taille moléculaire des polluants par rupture des cycles benzéniques. D'un point de vue application à un traitement, les travaux de MARTENS et FRANKENBERGER (1995), ont montré que l'addition de tel réactif sur un sol contaminé, et son couplage avec un surfactant permettait d'augmenter grandement la dégradation de HAP, dans le sol considéré.

1.4kg de terre est mélangé à l'aide d'un agitateur rotatif à 2.4l d'eau distillée pendant 12 heures. La concentration du réactif est la suivante : [H₂O₂]=2.5% (v/v) (solution initiale de peroxyde à 30% en volume) soit 200ml et [Fe²⁺]=10⁻⁴ moles.l⁻¹ soit 56.10^{-4} g par litre, soit donc $56.10^{-4} \times 2400\text{ml} = 13.44\text{mg}$ de sulfate de fer rajouté à la solution. (200ml+13.44mg puis on complète à 2400ml par de l'eau distillée).

La terre criblée à 10mm est identique dans les trois colonnes. Les flacons issus du pré-traitement au surfactant et à l'oxydant ont été placés dans un agitateur rotatif pendant 12 heures, avant la mise en place de leur contenu dans les colonnes, par fluidisation. La terre non traitée est aussi introduite par fluidisation dans la colonne. Chaque colonne est entourée d'un film en aluminium de manière à éviter toute dégradation des HAP due à la lumière. Après décantation pendant 48 heures, l'essai de perméabilité est initialisé.

III.2.4. Résultats des essais de percolation réalisés en colonnes.

III.2.4.1.Essai de perméabilité sur sable non pollué <2mm.

Les figures III-13-éch 15 et III-13-éch 16 représentent deux essais de perméabilité effectués sur le même type de sol non pollué. Seule la mise en place des échantillons fut différente puisque l'échantillon 15 fut préalablement séché avant d'être placé dans la colonne par remplissage à sec.

En revanche, l'échantillon 16 fut mis en place par fluidisation. Nous constatons, en comparant les figures III-13-éch 15 et III-13-éch 16, que les débits respectifs des deux échantillons ont été dans leur ensemble globalement identiques puisque ces derniers sont passés rapidement de 40l/h en début d'essai, à moins de 10l/h après cinq heures d'essai, pour se stabiliser ensuite aux alentours de 6 à 4l/h jusqu'à la fin de l'essai. Pour l'échantillon n°15, les perméabilités diminuent progressivement de 3.10^{-4} m/s à 10^{-4} m/s au cours des cinq premières heures, oscillent autour de 10^{-4} m/s⁻¹ jusqu'à 20h pour diminuer progressivement et se stabiliser autour de 5.10^{-5} m/s jusqu'à la fin de l'essai. Pour l'échantillon 16, mis en place par fluidisation dans l'eau, le même phénomène de diminution rapide des débits et de la perméabilité durant les cinq premières heures de l'essai se retrouvent, ces derniers passant de 30l/h en début d'essai à 7l/h vers 5 heures pour diminuer lentement de 7 à 3l/h entre 5 et 40h.

En revanche, même si une tendance générale d'évolution rapide des débits, est représentée par une diminution des débits en début d'essai, la comparaison des figures .III-13-éch15.et.éch16, permet de mettre en évidence des petites variations beaucoup plus irrégulières durant les premières heures d'essai pour l'échantillon 15.

III.2.4.2.Essai de percolation sur du sable pollué <2mm

L'observation de la figure III-13-éch 17 nous permet de constater que l'échantillon 17, constitué de sable pollué de taille granulométrique inférieure à 2mm mis en place par fluidisation dans l'eau, présente des valeurs de perméabilité nettement plus faibles que le sable équivalent non pollué n°16, sur toute la durée de l'essai. Ainsi, les valeurs de perméabilité diminuent progressivement de $2,7.10^{-6}$ m/s au premier jour, jusqu'à atteindre $9,6.10^{-7}$ m/s en fin d'essai à 27 jours.

Les débits, diminuent également progressivement de 0,2l/h en début d'essai pour atteindre des valeurs inférieures à 0,1l/h après 27 jours d'essais, avec néanmoins quelques irrégularités figurées par des augmentations "brutales" dans leur tracé.

Ainsi pour les deux sables <2mm, mis en place de façon identique, par fluidisation dans l'eau, la perméabilité est environ 150 fois plus faible en début d'essai et 15 fois plus faible au bout de 40 heures pour le sable pollué que pour le sable non pollué.

III.2.5. Conclusion / discussion série d'essais n°1.

Les caractéristiques générales des essais de perméabilité effectués sur ces trois échantillons, peuvent être résumées sur le tableau III-14 :

Référence échantillon	15	16	17	18
Perméabilité moyenne sur la totalité de l'essai en m/s	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$9,6 \cdot 10^{-5}$	$2,6 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-6}$
Débit moyen total en l/h	9,1	7,5	0,2	0,16
Volume total écoulé en litres	237	223	8	75
Durée de l'essai	41 heures	41 heures	41 heures	27 jours

Tableau III-14 : Caractéristiques générales des résultats des essais de perméabilités (série 1).

Echantillons	Série 1 (<2mm)			Série 2 (<10mm)		
	15	16	17	18	19	20
Nature	non pollué	non pollué	pollué	pollué	pollué	pollué
Mode de mise en place	à sec	fluidisation	fluidisation	fluidisation	fluidisation	fluidisation
Prétraitement	non	non	non	non	Surfactant	Oxydant
Durée d'essai	41h	41h	41h	41h	41h	41h
K moyen m/s	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$9,6 \cdot 10^{-5}$	$2,6 \cdot 10^{-6}$	$8 \cdot 10^{-5}$	$6,5 \cdot 10^{-5}$	$3,4 \cdot 10^{-6}$
Volume total en litres	237	223	8	149	2,5	2,5

Tableau III-15 : Résultats globaux obtenus après percolation en colonne pendant 41 heures.

Nous pouvons constater en comparant les échantillons 15 et 16, que, pour une durée d'essai identique de 41 heures, et dans des conditions opératoires proches, (seule la mise en place dans les colonnes est différente); les perméabilités des échantillons 15 et 16 sont comparables aux perméabilités obtenues en général pour des sables fins, c'est à dire autour de 10^{-4} à 10^{-5} m/s.

En revanche, lorsque l'on compare l'échantillon 16 avec l'échantillon 17 dans les mêmes conditions d'essai, et pour une même période (41 heures), nous pouvons remarquer :

- d'une part, une nette variation entre les débits moyens totaux, qui oscillent autour de 9,1l/h et 7,5l/h respectivement pour les échantillons 15 et 16 non pollués, alors qu'ils n'atteignent que 0,2l/h pour l'échantillon pollué.

- d'autre part, l'amplitude des résultats entre les échantillons non pollués et pollués (Tableau III-14) est remarquable. En effet, pour la même durée d'essai (41 heures), nous constatons que le volume total percolé moyen est égal à 230l pour les sols non pollués, alors qu'il n'est que de 8l pour le sol pollué, et ce, dans des conditions opératoires équivalentes (volume d'échantillon, taille granulométrique, mode de mise en place, pression de percolation, durée d'essai).

- enfin, les variations d'écoulements en sortie de colonne, représentées sur les courbes des figures III-13-éch 15, III-13-éch 16, et III-13-éch 17, par des "pics", sont attribuables à un arrangement des grains au sein du milieu poreux par déplacement successif de proche en proche, lors de la lente remontée de bulles d'air piégées au moment de la mise en place du sable. C'est notamment le cas entre les échantillons non pollués 15 et 16 où la chute brutale des débits enregistrée durant les cinq premières heures est ponctuée par des variations faibles des débits, mais notables (échantillon 15). On peut également émettre l'hypothèse que l'arrêt des percolations, a pu parfois, accélérer ce phénomène de migration des particules fines de proche en proche, lors de la remise en route du système. Cette hypothèse semble vérifiée si l'on se réfère aux arrêts de percolation effectués, on s'aperçoit qu'après chaque remise en marche de l'essai, une augmentation des valeurs de perméabilité se fait ressentir.

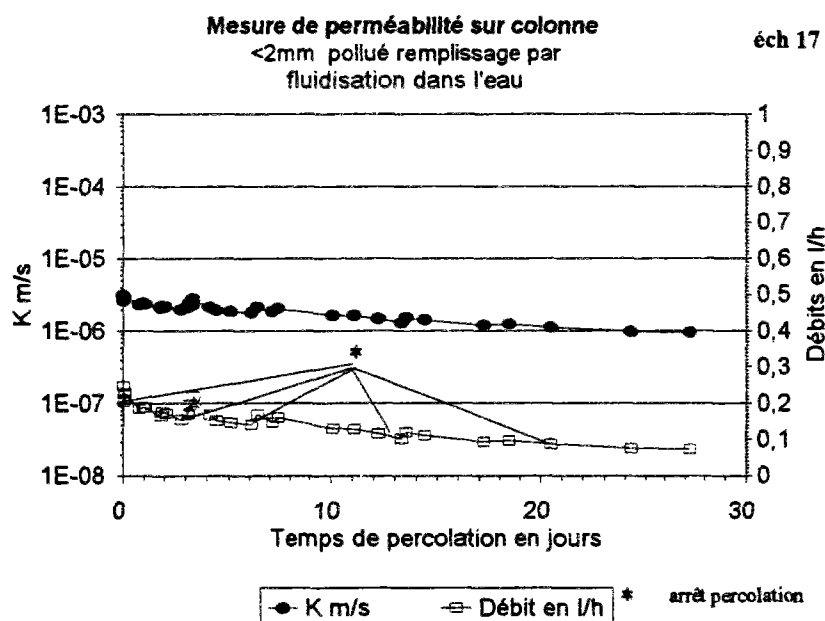
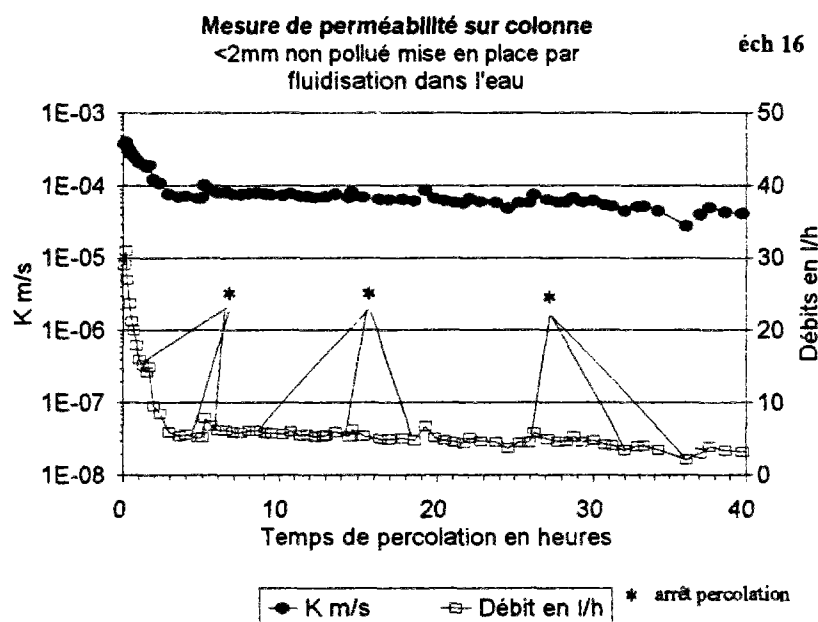
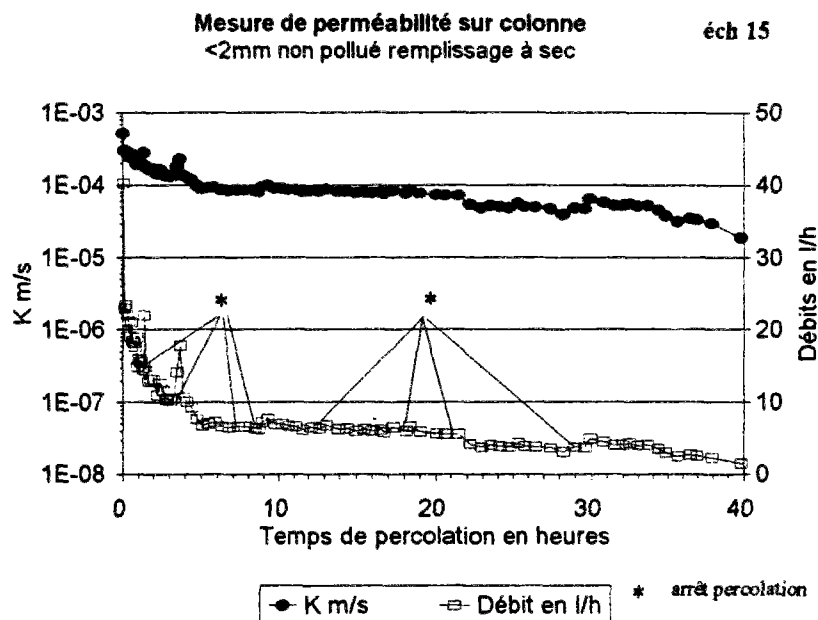


Figure III-13 : Mesures de perméabilité obtenues en colonnes de percolation, à charge constante.
 Echantillon 15 : Mesures de perméabilité sur sable non pollué <2mm remplissage à sec.
 Echantillon 16 : Mesures de perméabilité sur sable non pollué <2mm remplissage par fluidisation.
 Echantillon 17 : Mesures de perméabilité sur sable pollué <2mm remplissage par fluidisation.

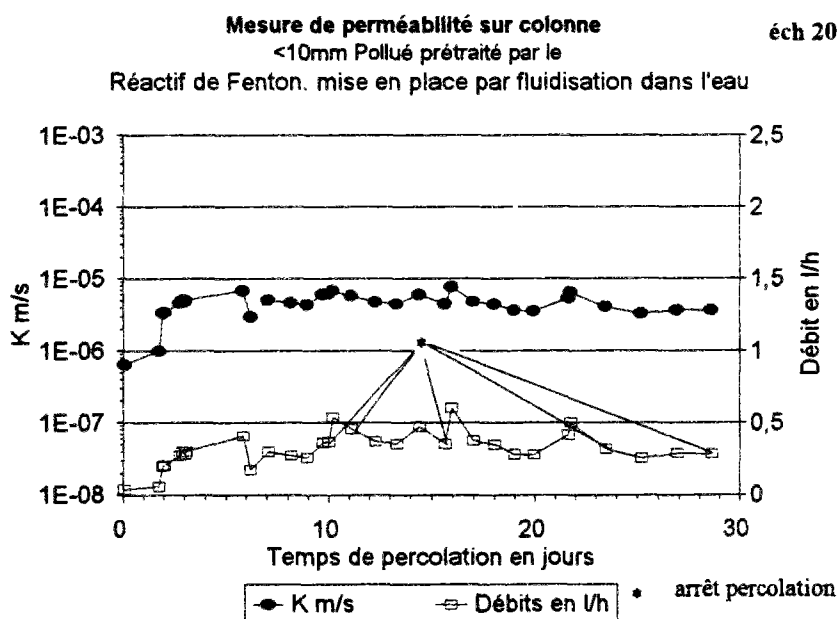
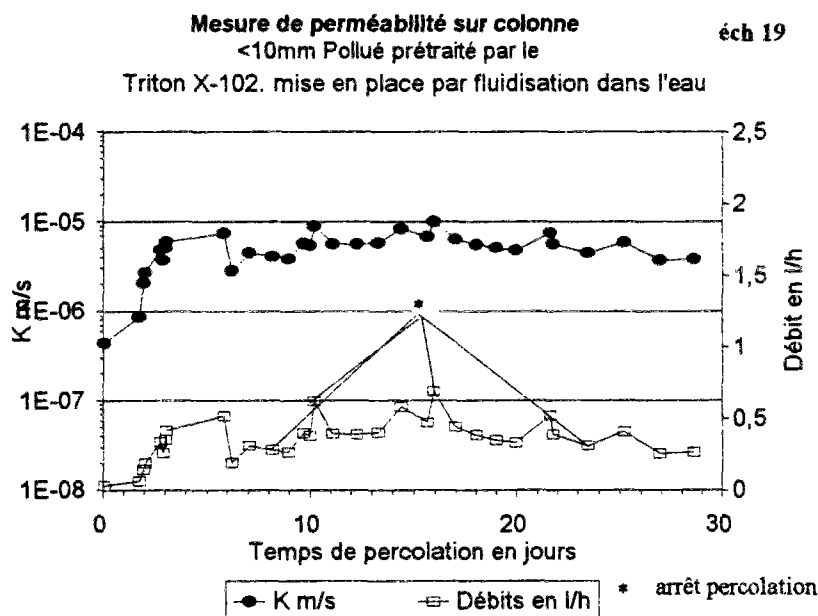
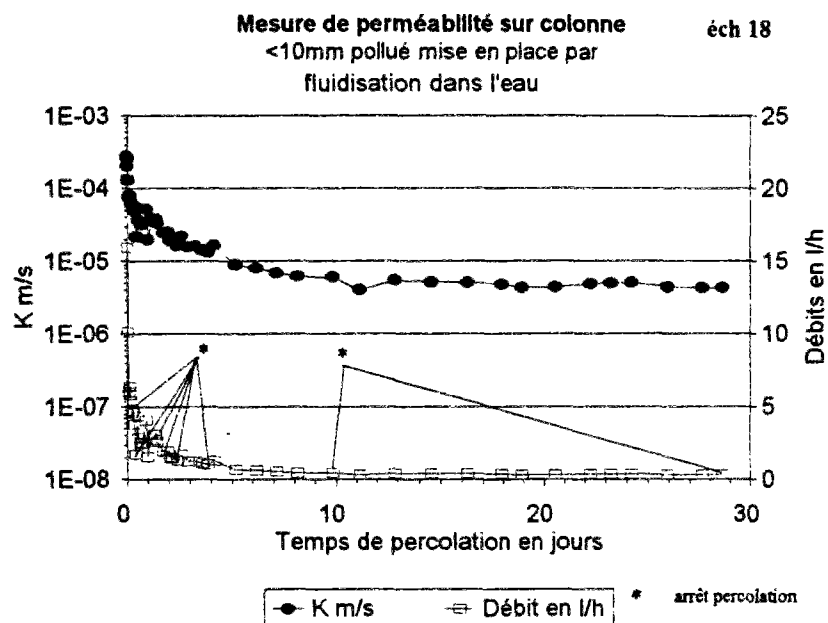


Figure III-14 : Mesures de perméabilité obtenues en colonnes, à charge constante série n°2.
 Echantillon 18 : Mesures de perméabilité sur sable non pollué S3 <10mm.
 Echantillon 19 : Mesures de perméabilité sur sable non pollué S3 <10mm pré-traité par le Triton X-102.
 Echantillon 20 : Mesures de perméabilité sur sable pollué S3 <10mm pré-traité au réactif de Fenton.

III.2.5.1. Essai de perméabilité sur une terre S3 polluée non traitée fraction <10mm.

La figure III-14-éch 18 représente un essai de perméabilité en colonne effectué sur un échantillon de sable pollué dont la fraction granulométrique est inférieure à 10mm. Nous constatons une forte variation des courbes de perméabilité et des débits. Ainsi, les débits chutent de 19,5l/h en moyenne au cours de la première heure jusqu'à 3l/h au bout de cinq jours pour se stabiliser ensuite, inférieurs à 0,5l/h jusqu'à la fin de l'essai (28 jours).

Les perméabilités passent de 2.10^{-4} m/s en début d'essai, à $4,5.10^{-6}$ m/s en moyenne entre 6 jours et la fin de l'essai. Nous pouvons aussi constater, sur les figures III-14-éch 18 et éch 19, une variation de débits irrégulière représentative d'un probable réarrangement des grains au cours de la percolation, puisque dans les premiers jours d'essai, suite aux arrêts induits par nécessité d'expérimentation, les perméabilités et les débits chutent irrégulièrement, pour se stabiliser par la suite.

III.2.5.2. Essais de perméabilité sur terres S3 polluées et préalablement traitées avec le Triton X-102 et par le réactif de Fenton.

Nous avons pu constater (Figure III-15) lors de la mise en place des échantillons dans les colonnes un granoclassement par sédimentation caractéristique, avec une quantité de fine non négligeable se déposant sur les grains de sables H2 sous forme d'une couche d'argile H1.

Nous avons observé respectivement les échantillons ayant subi un pré-traitement. Ils se disposent de la manière suivante:

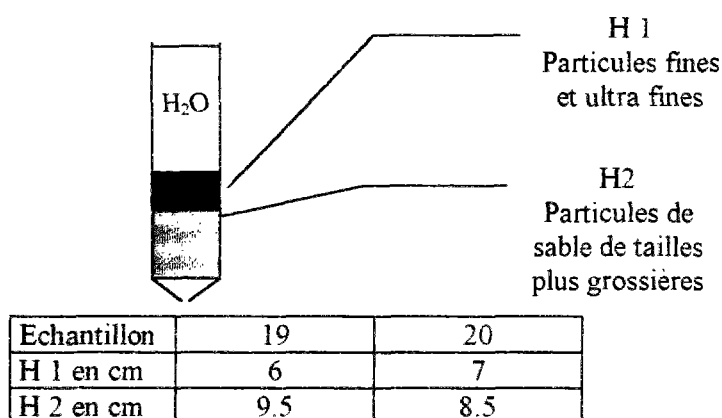


Figure III-15 : Caractéristiques des échantillons 5 et 6 après mise en place par fluidisation

Les caractéristiques des échantillons ainsi mis en place sont données dans le tableau III-16.

Référence échantillon	18	19	20
Pré-traitement	aucun	Triton X-102	Réactif de Fenton
Perméabilité moyenne mesurée sur la totalité de l'essai en m/s	4.10^{-5}	$5,1.10^{-6}$	$4,6.10^{-6}$
Débit moyen total en l/h	3.1	0.4	0.32
Volume total écoulé en litres	468	252	220
Durée totale de l'essai en jours	28	28	28

Tableau III-16 : Caractéristiques des échantillons de terre <10mm de la 2ème série d'essais de perméabilité sur colonne.

III.2.5.3. Echantillon pré-traité au surfactant

L'échantillon pré-traité à l'aide d'un surfactant (figure III-14-éch 19) présente une augmentation de la perméabilité. De $6,5.10^{-7}$ m/s au cours des premières 40 heures en moyenne, la perméabilité augmente à $5,3.10^{-6}$ m/s durant la suite de l'essai (perméabilité moyenne). Les débits augmentant respectivement de 0,03l/h en début d'essai à 0,4l/h après 4 jours, mais restent faibles dans l'ensemble.

III.2.5.4. Echantillon pré-traité au réactif de Fenton

La même constatation d'augmentation des mesures peut être faite au niveau des perméabilités ou une tendance à l'augmentation au cours du temps puis une stabilisation est remarquable. Il en va de même pour les débits (figure III-14-éch 20) qui de 0,03l/h augmentent légèrement à 0,3l/h en moyenne au cours de l'essai.

III.2.5.5. Essai granulométrique après percolation sur colonne

Au vu des observations réalisées sur les échantillons de la série d'essai n°2 (échantillons 18, 19, 20), nous avons effectué une granulométrie par voie humide à l'issu des essais de percolation. Les résultats de ces granulométries sont présentés sur le tableau III-17.

Référence échantillon	18 (pollué)		19 (surfactant)		20 (oxydant)	
Classes granulométriques en mm	% de passant	% de passant cummulé	% de passant	% de passant cummulé	% de passant	% de passant cummulé
5-10	5.14	100	5.97	100	5.31	100
2.5-5	7.27	94.86	5.83	94.04	7.54	94.69
1.25-2.5	9.68	87.59	4.85	88.21	4.83	87.15
0.63-1.25	7.06	77.91	7.35	83.36	4.82	82.32
0.315-0.63	24.69	70.85	21.15	76.01	22.43	77.5
0.16-0.315	23.31	46.16	28.43	54.86	30.62	55.07
0.08-0.16	4.15	22.85	3.88	26.43	4.50	24.45
0.04-0.08	2.90	18.7	4.40	22.55	4.42	19.95
<0.04	15.80	15.80	18.15	18.15	15.53	15.53

Tableau III-17 : Caractéristiques granulométriques des échantillons de la série d'essai n°2. (Echantillons non traités (18) et pré-traités (19= surfactant Triton X-102, 20=oxydant Fenton))

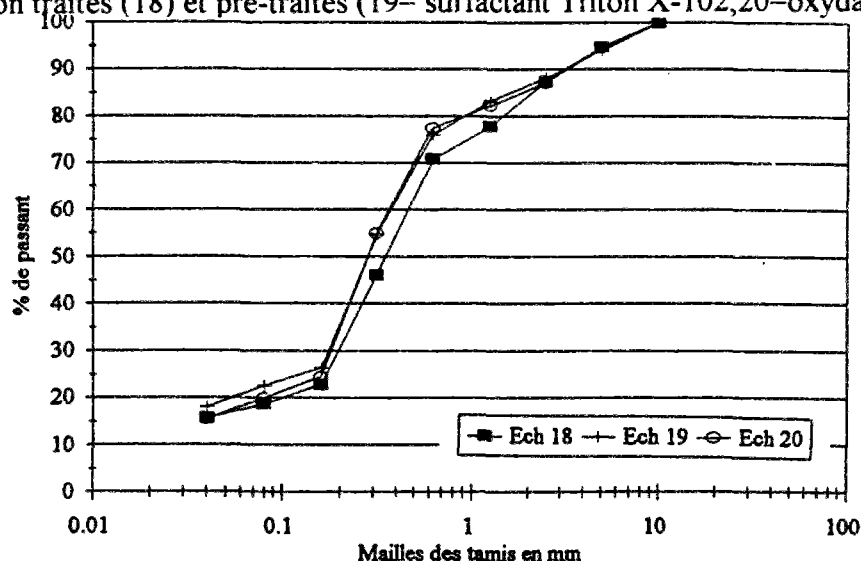


Figure III-16 : Courbes granulométriques des échantillons soumis à percolation après essais.

III.2.6. Conclusion / discussion série d'essais n°2

Pour la même terre S criblée à 10mm, si l'on compare l'échantillon non traité et ceux traités à l'aide du surfactant ou de l'oxydant, les résultats sont différents. Il est clair que le pré-traitement par le réactif de Fenton, ou par le surfactant Triton X-102, a provoqué une désagrégation du matériau lors de sa préparation. Cette désagrégation des échantillons est due en partie à l'action des agents chimiques mais aussi à l'action mécanique que les échantillons 19 et 20 ont subie lors de la mise en rotation des préparations pendant 10 heures.

Une sédimentation préférentielle et un granoclassement significatif furent constatés à l'issue de la mise en place des échantillons par fluidisation à l'intérieur des colonnes. Les figures III-15 et III-16 montrent que l'action des deux agents chimiques sur les échantillons de sable pollué étudiés entraîne une augmentation du pourcentage de fines et une désagglomération des agrégats des fractions granulométriques intermédiaires.

Ces deux échantillons traités (19 et 20), soumis aux mêmes conditions d'essai présentent des caractéristiques semblables en ce qui concerne l'évolution des perméabilités et des débits. Celles-ci, résumées sur le tableau III-16 montrent que les débits et les perméabilités sont faibles, de l'ordre de 0,4l/h pour une perméabilité moyenne totale de 5.10^{-6} m/s.

En revanche l'échantillon 18 non traité se comporte différemment dans le sens où la perméabilité décroît de façon brutale en début d'essai pour se stabiliser ensuite. Il se produit un phénomène de tassement et colmatage du matériau durant l'essai, la hauteur d'échantillon entre le début d'essai et la fin ayant varié de 1cm environ, soit un tassement de 7%. Ce tassement est dû à une désagrégation partielle des agrégats. Plusieurs illustrations du phénomène ont pu être réalisées sur la figure III-17.

Les figures III-14-éch 19 et 20, concernant les échantillons 19 et 20 montrent des courbes d'allures irrégulières, "chaotiques", qui semblent traduire une sensibilité plus grande aux fluctuations induites par les arrêts de percolation en cours d'essai, et la fuite de quelques microbulles d'air résiduelles piégées par le système, plutôt qu'un réarrangement des grains fortement désagregés lors du pré-traitement et ayant acquis un "volume minimal" lors de la sédimentation. Cette constatation a pu être faite en observant la surface supérieure des échantillons ou quelques "micro-trous" ont pu être observés, dûs à l'échappement constaté de petites bulles d'air résiduelles au cours de l'essai.

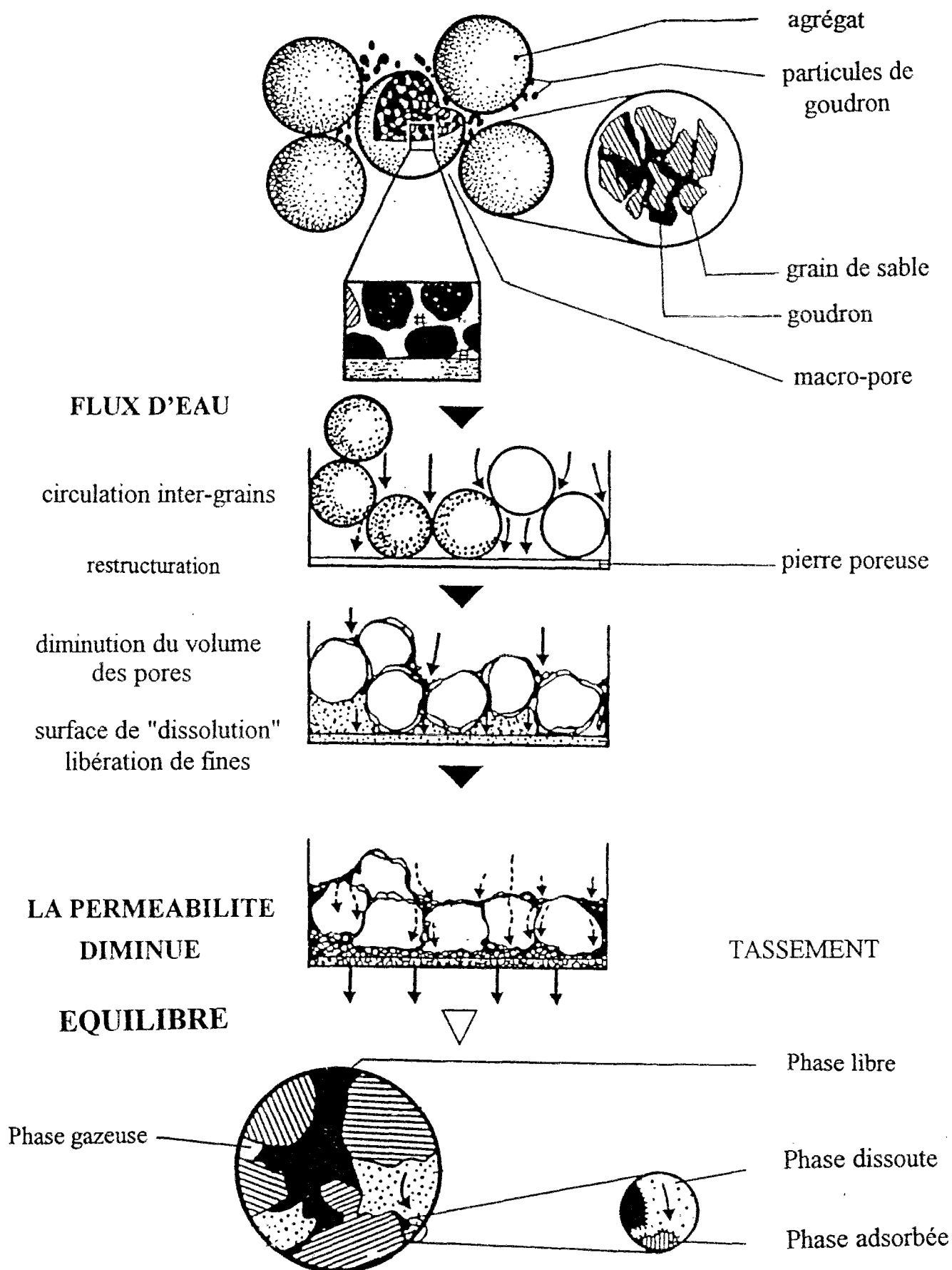


Figure III-17 : Illustration des phénomènes induits lors des essais de percolation sur colonnes et cellules de percolation.

III.3. Interprétations de la totalité des résultats des essais de perméabilité-discussion.

III.3.1. Evolution globale des perméabilités.

Au vu des différents résultats obtenus, nous pouvons dégager certaines caractéristiques du comportement de ces sols pollués par des goudrons. D'une part, nous pouvons remarquer une tendance générale de l'évolution du coefficient de perméabilité présentant une forte diminution des valeurs de perméabilité à l'eau, généralement d'un facteur 10 voire même 100 entre le début des essais et leur arrêt.

D'autre part, il est évident que le mode de mise en place des échantillons et le mode de compactage choisis influent sensiblement sur l'évolution du coefficient de perméabilité.

Il est aussi remarquable que le rôle de la teneur en eau initiale lors de la mise en place des échantillons est important sur l'évolution du coefficient k .

III.3.2. Influence des conditions expérimentales sur la mesure de la perméabilité

III.3.2.1. gradient hydraulique.

Les forts gradients peuvent entraîner une évolution de la structure interne des échantillons par migration des éléments les plus fins. Cette migration des particules fines peut se produire surtout dans le cas des mélanges argiles-sables, où ce phénomène a été observé à partir des filtres ou pierres poreuses situés en aval de l'éprouvette de sol. Il doivent être propres, sans dépôts de particules après avoir effectué un essai, et le percolat doit rester limpide.

Dans nos essais, il fut possible que la différence de pression d'eau entre l'amont et l'aval de l'échantillon, lorsque celui-ci était simplement vibro compacté, entraîna sa consolidation, une diminution de la perméabilité et un remaniement structural de l'ensemble. En revanche, cette possibilité de restructuration important ne fut pas à craindre lorsque le matériau testé fut compacté, car le compactage dynamique ou statique, même à faible pression correspond en réalité à des pressions statiques (1MPa) supérieures aux pressions hydrauliques (pression de percolation 0,04MPa) qui furent utilisées lors de nos essais.

Ce problème de remaniement structural a dû probablement se poser lors des essais réalisés sur des échantillons non compactés (c'est à dire foisonnés ex: n°21).

III.3.2.2. Influence de la teneur en eau de compactage sur la perméabilité

Les résultats de perméabilité obtenus à différentes teneurs en eau de compactage et de mise en place sont représentés figures III-4 à III-9.

Ils nous permettent de constater d'une façon globale que les valeurs moyennes de perméabilités calculées sur l'ensemble d'un essai, montrent que la perméabilité des sols mis en place du côté sec de l'optimum ($W_{opt}=16\%$) est plus forte que celle des échantillons compactés côté humide.

L'allure générale des perméabilités obtenues est représentée sur la figure III-18. Cette figure illustre les relations perméabilité / densité sèche et teneur en eau. Elle montre qu'il existe une teneur en eau optimale pour laquelle la perméabilité est minimale.

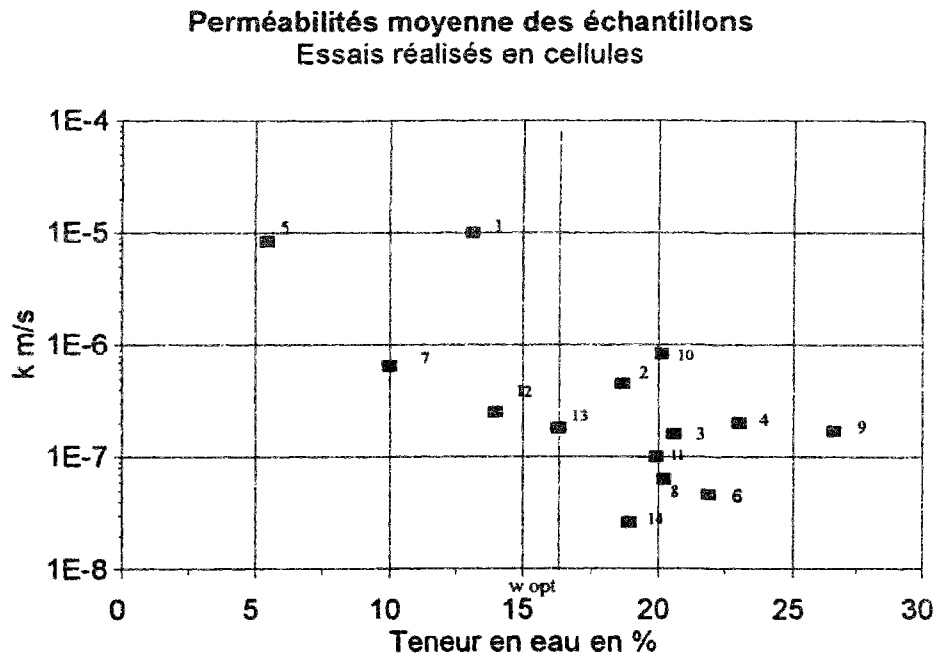


Figure III-18 : Représentation de la relation perméabilité / teneur en eau, des différents tests réalisés ($W_{opt}=16\%$).

DANIEL et AL 1985, ont pu démontrer que la perméabilité des sols fins argileux compactés étaient très influencée par la teneur en eau initiale de compactage. Ces faits ont été établis sur des sols non contaminés. Or, nos essais sur le sable S3 imprégné de polluants, montrent un colmatage et des diminutions des débits et des perméabilités importantes suivant le mode de mise en place et la teneur en eau initiale de mise en place des échantillons. Il semble là aussi, que la teneur en eau initiale de compactage joue un rôle essentiel dans le comportement futur du sol vis à vis de la libre circulation des fluides percolants.

III.3.2.3. Influence de la taille des agrégats et du mode de mise en place sur la valeur de la perméabilité.

III.3.2.3.1. Cellule de percolation à contre pression latérale : influence de l'effort de compactage et du mode de compactage sur la perméabilité.

Pour mettre en évidence l'influence possible de la taille des éléments sur la perméabilité, un criblage (tamis ouverture 5mm) du matériau fut effectué sur des éléments passant à 5 mm et étant retenus au tamis de 2 mm, puis sur des éléments passant à 2 mm, pour la réalisation d'un compactage Proctor dynamique normalisé.

Le sol compacté du côté sec de la courbe de compactage Proctor ($w < 16\%$) contient de "larges" vides inter-agrégats. En revanche la perméabilité semble indépendante de la taille des agrégats, lorsque le sol est compacté côté humide ($w > 16\%$). Quand les agrégats sont relativement humides, (côté humide de la courbe de compactage Proctor ($w > 16\%$)), ils se déforment facilement pendant le compactage, minimisant ainsi les vides inter agrégats par collage des grains entre eux et, de fait la perméabilité s'en trouve fortement diminuée.

III.3.2.3.2. Colonne de percolation : influence du mode de mise en place et du traitement des échantillons.

Les essais réalisés en colonnes pour des agrégats de tailles inférieures à 2mm et pour des échantillons de sol de tailles granulométriques inférieures à 10mm, montrent que, sans traitement préalable, ces échantillons soumis à une circulation d'eau à faible pression, évoluent vers des perméabilités nettement plus faibles dans l'ensemble que celles obtenues avec un échantillon non pollué.

Il semble que les échantillons subissent un phénomène de colmatage générale rapide, (en tout début d'essai) par une désagrégation des grains pollués qui influe sur la circulation de l'eau. Cette désagrégation partielle des éléments pollués mis en contact avec l'eau, a pu être illustrée sur le schéma de la figure III-17. Ainsi, si les échantillons sont au départ bien individualisés, après contact avec l'eau, ces derniers semblent se désagréger partiellement et ce, quelque soit la taille granulométrique des éléments. Un exemple de cette désagrégation partielle peut être illustré sur la figure III-19.



Figure III-19 : Photographie d'un échantillon de sable pollué après essais en colonne.

Observations générales dans les deux types d'essais.

Il a pu parfois se produire, lors de la mise en place du matériau, un piégeage de bulles d'air, lorsque les teneurs en eau furent supérieures à la teneur en eau obtenue à l'optimum Proctor. En général, ce piégeage peut se réaliser par simple collage des agrégats entre eux et le tassement induit lors de la mise en place d'un échantillon. Ces bulles d'air peuvent jouer le rôle de valves. CHAPUIS & Al en 1988, ont démontré, lors d'essais de perméabilité réalisés sur des matériaux granulaires et argileux, que lorsque le sens d'écoulement du fluide percolant était vertical, du haut vers le bas, les petites bulles d'air sont piégées par les constriction des pores, pendant leur migration vers le haut. Une fois piégées, elles peuvent grossir par croissance progressive, puis devenir assez larges pour déplacer les particules de sol avoisinantes, se déplacer en gagnant une certaine vitesse et énergie, et traverser l'échantillon de proche en proche. En revanche, lorsque le sens de l'écoulement a lieu du bas vers le haut, il se produit un phénomène inverse au mouvement précédent, mais qui reste le même dans son principe de mécanisme (piégeage, accroissement, migration). Dans les deux cas, et dans nos essais, le rôle du polluant en tant que ciment inter-agrégats semble important au vu des variations soudaines des débits obtenues dans certains essais, non liées aux discontinuités de l'expérience (mise en route et arrêt des percolations).

En revanche, ces phénomènes peuvent aussi se produire juste après la remise en circulation des fluides. Ces constatations ont pu être faites lors de nos essais lorsque la mise en place des échantillons fut réalisée à une teneur en eau inférieure à la teneur en eau optimale w_{opt} . Le fluide percolant est alors responsable de la migration des particules de proche en proche. Ainsi, à faible teneur en eau de mise en place, les mesures du coefficient de perméabilité ont été fortement perturbées dans les variations des débits, témoignage d'une restructuration interne des échantillons. Le cas le plus représentatif est observable sur l'échantillon testé en cellule de percolation n°5.

III.3.2.4. Influence du goudron sur la valeur de la perméabilité.

Le rôle du contaminant dans le comportement des sols testés en laboratoire est loin d'être négligeable. En effet, pour ce type de contamination par les produits liquides non miscibles à l'eau, ils jouent le rôle de "quatrième" phase constitutive du sol (LIU, 1995). L'action du goudron au sein du sol, modifie les caractéristiques de ce dernier, la courbe de compactage au Proctor Normal montre : la forte sensibilité du sol aux variations de teneur en eau et des compacités différentes.

CHAPITRE IV

ANALYSE CHIMIQUE DES COMPOSES DU SOL S3 ET DES PRODUITS DE PERCOLATION DES TESTS DE PERMEABILITE.

IV.1. Problématique.

L'analyse reste un point incontournable de la réhabilitation des sites d'anciennes usines à gaz; qu'il s'agisse de l'audit ou des traitements biologiques, c'est elle qui détermine le devenir des terres et le choix du traitement. C'est aussi l'analyse chimique qui permet de quantifier sur les bases du dosage des 16 Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques les seuils de décontamination des sols et l'efficacité du traitement employé.

Mais cette analyse pose, pour le cas des produits issus de la pyrolyse de la houille répandus dans le sol, un certain nombre de problèmes.

Le rendement d'extraction lors de l'analyse est le principal écueil. La multitude de composés peut causer des interférences perturbant l'identification et la quantification des pics obtenus lors de l'analyse chimique.

De plus, certains produits sont parfois mal détectés par manque de sensibilité des techniques mises en oeuvre, et la représentativité des résultats analytiques peut ainsi être faussée.

Les analyses ont été effectuées pour l'échantillon S3, au sein du laboratoire de biotechnologie de la division environnement et du laboratoire de spectrométrie de masse de la division analyse de Gaz de France. Pour les lixiviats de percolation, les analyses ont été confiées à un laboratoire extérieur privé agréé.

IV.2. Objectifs des analyses chimiques réalisées.

La caractérisation par les pertes au feu nous a permis d'aboutir à certaines conclusions concernant la répartition du polluant au sein des échantillons de sol, avec notamment une agglomération caractéristique par classes granulométriques.

Nous avons cherché, en utilisant l'outil analytique, non pas à faire une analyse systématique de chaque échantillon, mais à quantifier globalement l'échantillon de terre S3 issu du site, de manière à coupler les résultats obtenus lors de la caractérisation quantitative par les pertes au feu, pour essayer de dégager une tendance éventuelle de distribution préférentielle des HAP, dans des fractions de sol particulières.

Pour les analyses des percolats extraits des essais de perméabilité, nous avons cherché à établir une tendance d'évolution et de transferts des polluants dans la phase aqueuse, et ce, à partir des analyses effectuées sur quatre échantillons de sol S3 soumis aux tests de percolation décrits dans le chapitre précédent (essais en cellules de percolation forcée, essais en colonnes, échantillons de terre pré-traités ou non). L'analyse des produits est effectuée par chromatographie liquide haute performance (CLHP).

IV.3. ANALYSE DU SOL S3

IV.3.1.Principe et méthode.

La chromatographie liquide haute performance est une méthode physique d'analyse dans laquelle les composants à séparer sont répartis entre deux phases, l'une constituée par un lit de matériau solide stationnaire (colonne constituée de particules de silice), au travers duquel circule la deuxième phase (solvant). L'identification des pics des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques se fait : par comparaison de leur temps de rétention avec des standards et par l'analyse des spectres obtenus. Ces pics sont ensuite identifiés puis quantifiés. L'appareil utilisé est un chromatographe liquide Hewlett Packard 1050 connecté à un détecteur multi longueurs d'onde à barrette de diodes.

Le principe général de la détection par CLHP peut se résumer de la manière suivante :

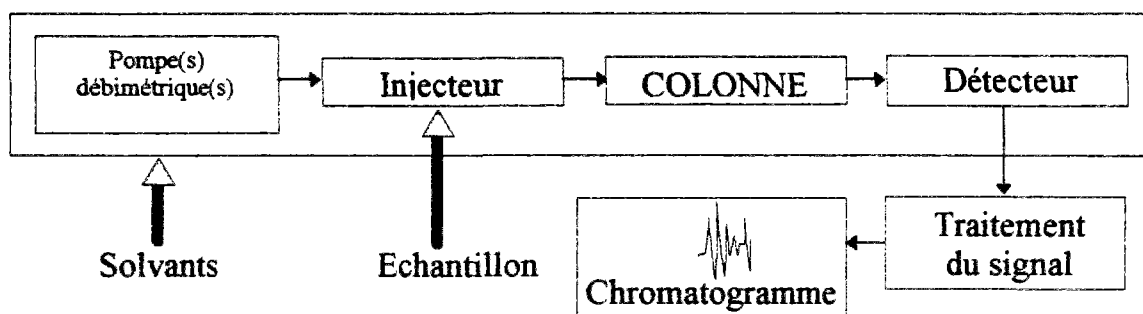


Figure IV-1 : Principe général de fonctionnement de la chromatographie liquide haute performance.

IV.3.2.Application à la terre contaminée S3.

L'échantillon analysé chimiquement est l'échantillon référencé S3 dans l'étude de la caractérisation par la perte au feu. Pour aborder cette étude chimique, nous avons pris comme outil de référence, la répartition de l'agglomération en fonction des classes granulométriques de l'échantillon.

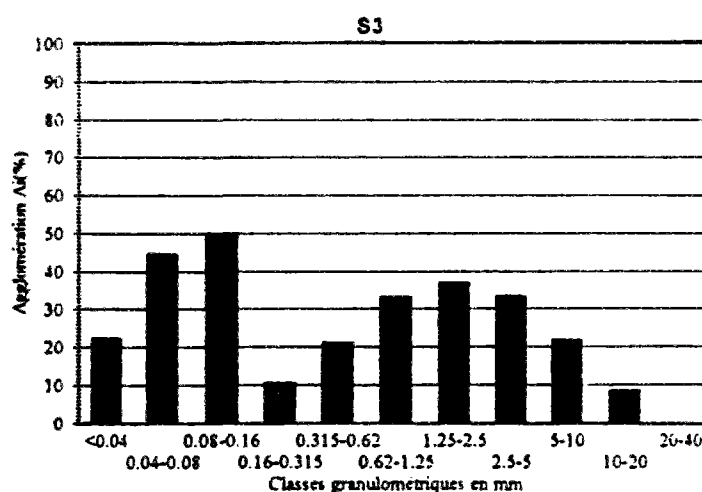


Figure IV-2 : Taux d'agglomération du polluant au sein de l'échantillon S3.

Nous constatons sur la figure IV-2, que la pollution du sol sous forme agglomérée se répartie globalement suivant trois tendances particulières : nous avons séparé l'échantillon selon trois grandes classes granulométriques en considérant la répartition du polluant après tamisage par voie humide de manière à obtenir :

- une fraction fine qui est alors constituée de la somme des éléments contenus dans les fractions inférieures à 0.16mm,
- une fraction moyenne formée de la somme des éléments contenus dans les fractions 0.16 à 0.63mm,
- enfin une fraction granulométrique supérieure à 0.63mm.

De fait, nous avons obtenu trois lots que nous avons ensuite homogénéisés soigneusement avant de les diviser en deux. Des six lots ainsi produits, trois furent soumis directement à l'analyse et ont été référencés "S3 brut fraction. ..."; les trois autres furent broyés séparément, manuellement au mortier d'Agathe, avant analyse, de façon à obtenir une poudre homogène, et référencés "S3 broyé fraction. ...". Ils sont ensuite soumis à l'analyse.

L'organigramme de préparation des échantillons est schématisé en figure IV-3.

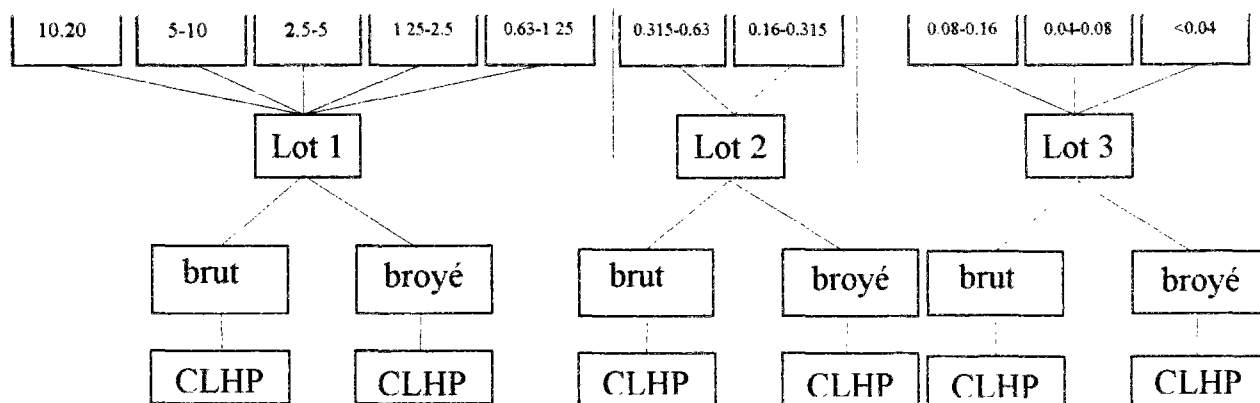


Figure IV-3 Préparation des échantillons de terre pour les analyses HPLC

IV.3.3. Préparation de l'échantillon

La quantité de terre mise en oeuvre pour chaque analyse est de l'ordre de 30 grammes. L'échantillon est introduit dans un flacon d'un volume de 250ml, muni d'un bouchon téflonné. Une masse de sulfate de sodium égale à celle de la terre est ensuite introduite. On ajoute 100ml d'un mélange de cyclohexane-acétone (85/15;v/v). Le volume de cyclohexane ($d=0.78$) introduit est déterminé par pesée.

Le mélange est ensuite placé dans un mélangeur rotatif pendant 90 minutes, à température ambiante, puis est laissé à décanter pendant 10 heures. La phase cyclohexane-acétone est ensuite récupérée puis placée dans des tubes de centrifugation. On rajoute environ un volume d'eau pour 4 volumes de solvant cyclohexane-acétone, puis la phase acétone-eau est éliminée par aspiration. Cette opération de lavage est répétée 3 fois. La capacité des composés du goudron à s'adsorber sur une phase solide (LICHROPREP Si60) permet le transfert des HAP contenus dans un solvant tel que le cyclohexane en solvant acétonitrile utilisé pour les dosages CLHP.

L'échange de solvant cyclohexane-acétonitrile se pratique par adsorption des composés extraits, sur la phase solide. Pour réaliser cette opération, une petite colonne de verre est remplie avec 2 grammes de LICHROPREP Si60. Cette phase est ensuite intercalée entre deux frittés. Deux grammes de sulfate de sodium anhydre sec sont ensuite ajoutés au dessus de cette phase. Les colonnes préparées se conservent au dessiccateur pour éviter la prise d'humidité. La colonne est ensuite conditionnée juste avant son utilisation par passage de 5ml de cyclohexane de pureté CLHP. Puis 1 ml de l'échantillon "solution dans le cyclohexane" est ensuite déposé sur la colonne. Le cyclohexane est éliminé par simple dépression pratiquée au bas de la colonne (chambre à vide). La phase LICHROPREP Si60 est ensuite rincée par 1ml de cyclohexane, puis la colonne est laissée sous légère dépression pendant environ 1 heure. Les composés retenus sur la colonne sont élués par de l'acétonitrile dans une fiole jaugée de 10 ml de capacité.

IV.3.4. Résultats d'analyse du sol S3

IV.3.4.1. Résultats obtenus directement après analyse par CLHP

IV.3.4.2. Résultats d'analyse sur un goudron "pur" issu du site

Un échantillon de goudron "pur", c'est à dire prélevé directement sur le site dans une poche de polluant, a été analysé. Les résultats obtenus sont donnés sur le tableau IV-1.

Résultats exprimés en mg/kg de terre sèche	Nombre de cycles	GOUDRON "PUR" SITE "S"		
		Concentration en mg/kg de matériau sec	% par HAP	% de HAP par nombre de cycles
Naphtalène	2	5940	24.40	62.88
Acénaphtène	2	216	0.88	
Acénaphthylène	3	2242	9.21	
Anthracène	3	1102	4.52	
Fluorène	3	1700	6.98	
Phénanthrène	3	4104	16.86	
Benzo (a) anthracène	4	465	1.91	22.77
Chrysène	4	653	2.68	
Fluoranthène	4	2588	10.63	
Pyrène	4	1836	7.54	
Benzo (a) pyrène	5	864	3.55	14.35
Benzo (b) fluoranthène	5	532	2.18	
Benzo (g,h,i) pérylène	5	1018	4.18	
Benzo (k) fluoranthène	5	347	1.42	
Dibenzo (a,h) anthracène	5	465	1.91	
Indéno (1,2,3) pyrène	6	269	1.10	
TOTAL 16HAP [mg/kg]	-	24341	100	100

Tableau IV-1 : Résultats d'analyse d'un goudron "pur" par CLHP échantillon S3.

IV.3.4.3. Valeurs théoriques après pondération par la courbe granulométrique. Reconstitution du sol S3.

L'ensemble des résultats obtenus lors de l'analyse des différentes fractions granulométriques préparées selon le mode opératoire décrit dans le paragraphe IV-3-2 est récapitulé dans le Tableau IV-3. Les valeurs théoriques recalculées après pondération par la courbe granulométrique de l'échantillon S3 sont données dans le tableau IV-4.

Classes granulométriques en mm	Granulométrie (%)	Perte au feu 500°C-18h pour 1000g de brut (g)	Granulométrie (%)	Σ PFA pour les trois fractions considérées (g)	% PFA par rapport au total de pollution carbonée	Agglomération par classes granulométriques (%)
10-20	0.64	0.6	24.6	67.5	40.74	8.65
5-10	4.82	9.7				21.81
2.5-5	5.08	16.3				33.54
1.25-5	5.22	17.1				37.15
0.63-1.25	8.87	23.8				33.45
0.315-0.63	23.29	29.2	55.4	52.6	32.0	21.20
0.16-0.315	32.09	23.4				10.63
0.08-0.16	3.56	8.8	20.0	45.6	27.53	50.21
0.04-0.08	1.98	4.3				44.70
<0.04	14.44	32.5				22.51
Total colonne	100	165.7	100	165.7	100	-

Tableau IV-2 : Caractéristiques de l'échantillon S3 déterminées lors de la caractérisation.

Résultats exprimés en mg/kg de terre sèche	Nombre de cycles	S3 brut non broyé par fractions			S3 broyé par fraction		
		0.63-20 mm	0.16-0.63 mm	<0.16 mm	0.63-20 mm	0.16-0.63 mm	<0.16 mm
Naphtalène	2	330	17	20	242	18	309
Acénaphtène	2	51	20	79	208	39	242
Acénaphthylène	3	90	37	62	127	57	65
Anthracène	3	370	70	329	199	107	673
Fluorène	3	206	23	218	100	58	406
Phénanthrène	3	1000	160	477	371	198	1863
Sous total 1	-	2047	327	1185	1247	477	3558
Répartition 1/16 HAP (%)	-	28	16	16	20	15	31
Benzo (a) anthracène	4	494	179	1126	540	432	928
Chrysène	4	384	147	659	684	211	381
Fluoranthène	4	1368	476	847	894	637	2337
Pyrène	4	963	332	547	935	484	1704
Sous total 2	-	3209	1134	3179	3053	1764	5350
Répartition 2/16 HAP (%)	-	43	54	43	49	55	46
Benzo (a) pyrène	5	379	165	765	487	277	703
Benzo (b) fluoranthène	5	1126	173	953	630	301	888
Benzo (g,h,i) pérylène	5	187	87	398	283	104	305
Benzo (k) fluoranthène	5	211	82	383	297	118	380
Dibenzo (a,h) anthracène	5	41	17	108	40	38	70
Indéno (1,2,3) pyrène 6	6	191	106	359	207	110	361
Sous total 3	-	2135	630	2966	1944	948	2707
Répartition 3/16 HAP (%)	-	29	30	41	31	30	23
TOTAL 16HAP [mg/kg]/fraction		7391	2091	7330	6244	3189	11615

Tableau IV-3 : Résultats d'analyse de sol par CLHP échantillon S3.

Résultats exprimés en mg/kg de terre sèche	Nombre de cycles	S3 brut non broyé par fractions				S3 broyé par fraction			
		0.63-20 mm	0.16-0.63 mm	<0.16 mm	0-20mm sol total	0.63-20 mm	0.16-0.63 mm	<0.16 mm	0-20mm sol total
Naphtalène	2	81	9	4	94	60	10	62	132
Acénaphtène	2	13	11	16	40	51	22	48	121
Acénaphthylène	3	22	20	12	54	31	32	13	76
Anthracène	3	91	39	66	196	49	59	135	243
Fluorène	3	51	13	44	108	25	32	81	138
Phénanthrène	3	246	89	95	430	91	110	373	574
Sous total 1	-	504	181	237	922	307	265	712	1284
Répartition 1/16 HAP (%)	-	28	16	16	21	20	15	31	23
Benzo (a) anthracène	4	122	99	225	446	133	239	186	558
Chrysène	4	95	81	132	308	168	117	76	361
Fluoranthène	4	337	264	169	770	220	353	467	1040
Pyrène	4	237	184	109	530	230	268	341	839
Sous total 2	-	791	628	635	2054	751	977	1070	2798
Répartition 2/16 HAP (%)	-	43	54	43	46	49	55	46	50
Benzo (a) pyrène	5	93	91	153	337	120	153	141	414
Benzo (b) fluoranthène	5	277	96	191	564	155	167	178	500
Benzo (g,h,i) pérylène	5	46	48	80	174	70	58	61	189
Benzo (k) fluoranthène	5	52	45	77	174	73	65	76	214
Dibenzo (a,h) anthracène	5	10	9	22	41	10	21	14	45
Indéno (1,2,3) pyrène 6	6	47	59	72	178	51	61	72	184
Sous total 3	-	525	348	595	1468	479	525	542	1546
Répartition 3/16 HAP (%)	-	29	30	41	33	31	30	23	27
TOTAL 16HAP [mg/kg]/fraction		1820	1157	1467	4444	1537	1767	2324	5628
Répartition 16 HAP (%)		41	26	33	100	27	31	41	100
TOTAL 16 HAP [mg/kg]		4444				5628			

Tableau IV-4 : Résultats calculés pour le sol S3 après pondération par l'importance de chaque fraction granulométrique dans la courbe granulométrique.

Fractions granulométriques en mm	0.63-20	0.16-0.63	<0.16	0-20mm (sol total)
PF 500°C-18h g/kg de terre	67.5	52.6	45.6	165.7

	Echantillon brut	Echantillon broyé
PF 500°C-18h (g/kg de sol)	165.7	165.7
Total des 16 HAP (g / 1 kg de sol sec)	4.4	5.6
% 16 HAP/ PF500	2.7	3.4

Tableau IV-5 : Part théorique des HAP dans l'analyse de sol S3 après pondération par la courbe granulométrique.

IV.3.4.4. Quantification des HAP. Résultats théoriques recalculés après pondération par la courbe granulométrique.

La valeur de la perte au feu à 500°C-18 heures étant ramenée à 165.7g pour 1 kg de sol pollué considéré, nous estimons que cette valeur correspond à la quantité totale de matière carbonée contenue dans 1 kg de sol S3.

Compte tenu des résultats obtenus dans le tableau IV-5, la valeur théorique totale des 16 HAP obtenue après dosage en CLHP est rapportée au kilogramme de sol soit 4.4g dans le cas du sol S3 brut, et 5.6g pour l'échantillon de sol S3 broyé.

Si on considère donc un kilogramme de terre S3 polluée, dont la perte au feu absolue calculée est de 165,7g, celle-ci représenterait, par hypothèse, la quantité de matière hydrocarbonée totale contenue dans le kilogramme de sol. Alors, 4,4 et 5,6g représentent la quantité totale des 16 HAP contenue dans chaque échantillon reconstitué. Il apparaît alors, que 97,3%, dans le cas de l'échantillon brut, et 96,6% pour l'échantillon broyé, de la matière hydrocarbonée ne seraient pas des 16 HAP dosés par l'analyse en chromatographie liquide haute performance. Les pourcentages représentatifs des 16 HAP par rapport à la pollution carbonée totale sont donc de 2,7% et 3,4% respectivement pour les échantillons de sol brut et broyé.

Ces résultats se rapprochent de ceux obtenus dans le tableau IV-1 relatifs à la composition d'un goudron où la part des 16 HAP totaux de la liste EPA, représente environ 2,5% de la quantité totale ramenée à 1 kg de matière sèche.

IV.3.5. Comparaison de la répartition des 16 HAP en fonction des classes granulométriques.

En appliquant la même démarche comparative entre les échantillons préalablement broyés au mortier d'Agathe, et ceux non broyés, nous pouvons remarquer des valeurs globales de concentrations supérieures pour les échantillons broyés à celles obtenues avec les échantillons bruts (Tableau IV-4) à l'exception de la fraction granulométrique 0.63-20mm. Lorsque l'on considère la répartition théorique en pour-cent des différents HAP en fonction des classes granulométriques, celle-ci peut être résumée dans les tableaux IV-6 et IV-7.

		0.63-20mm	0.16-0.63mm	<0.16mm
% HAP par fraction	2-3 cycles	28	16	16
	4 cycles	43	54	43
	5-6 cycles	29	30	41
Total % 16 HAP dans le sol total		41	26	33

Tableau IV-6 : Pourcentages de la répartition théorique des 16 HAP pour 1 kg de sol brut sec.

		0.63-20mm	0.16-0.63mm	<0.16mm
% HAP par fraction	2-3 cycles	20	15	31
	4 cycles	49	55	46
	5-6 cycles	31	30	23
Total % 16 HAP dans le sol total		27	31	41

Tableau IV-7 : Pourcentages de la répartition théorique des 16 HAP pour 1 kg de sol broyé sec.

Ainsi la répartition totale des 16 HAP selon les fractions granulométriques considérées peut être résumée sur le tableau IV-8.

Fractions granulométriques	0.63-20mm	0.16-0.63mm	<0.16mm
Répartition des 16 HAP (%) échantillon brut	41	26	33
Répartition des 16 HAP (%) échantillon broyé	27	31	41

Tableau IV-8 : Répartition globale (en %) des 16 HAP selon les échantillons et les fractions granulométriques considérées.

Comme nous pouvons le constater sur le tableau IV-8 et la figure IV-4, une grande partie des HAP se retrouve dans les fractions fines et intermédiaires pour environ 60% pour l'échantillon brut et 72% pour l'échantillon broyé.

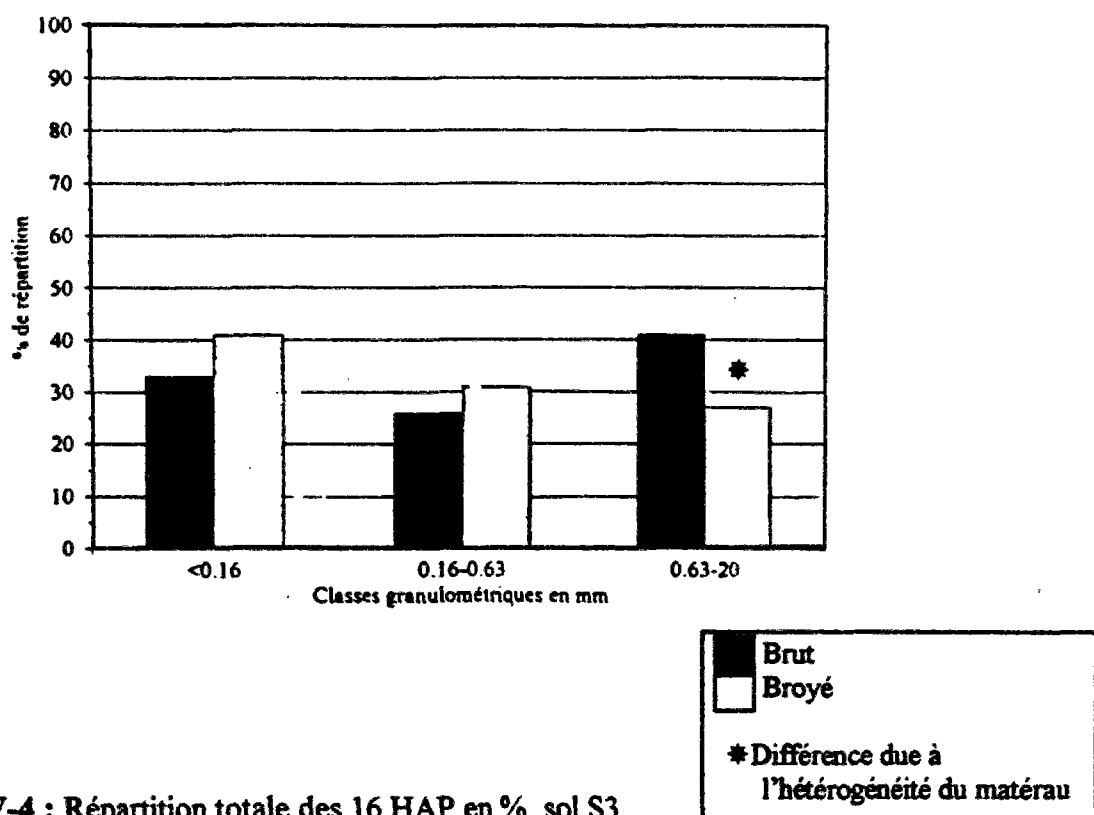


Figure IV-4 : Répartition totale des 16 HAP en %. sol S3.

IV.3.5.1. Comparaison de la distribution théorique des HAP par nombre de cycles.

Dans leur globalité, les résultats obtenus indiquent que les HAP semblent beaucoup mieux accessibles à la détection lorsque le sol a subi un broyage préalable avant l'analyse.

L'analyse des concentrations théoriques des polluants calculées après pondération par la courbe granulométrique au sein des trois fractions granulométriques étudiées (0.63-20mm; 0.16-0.63mm; inférieur à 0.16mm) montre une répartition des HAP globalement assez régulière au sein des échantillons, avec néanmoins des variations importantes quant aux teneurs en différents composés.

Pour l'échantillon S3 considéré, et indépendamment du mode de préparation, la part des HAP 4 cycles est toujours supérieure à 40% quelques soient les fractions considérées.

Ces résultats semblent difficilement interprétables en terme d'évolution ou de tendance de répartition préférentielle des polluants vis à vis de telle ou telle fraction granulométrique. Néanmoins, la distribution des pourcentages illustrés dans les tableaux IV-6, IV-7, et IV-8, montrent en effet une régularité dans la dispersion des polluants au sein des fractions de sol, en termes globaux.

En revanche, les concentrations obtenues (tableau IV-4) et les graphiques s'y rapportant (figure IV-5) montrent des différences évidentes entre les divers composés, avec des variations sur la répartition en pourcentages par classes de HAP des matériaux bruts et broyés.

IV.3.5.2. Fraction 0.63-20mm brut

Il semble que pour la fraction grossière, 28% des 16 HAP dosés sont des HAP légers à deux ou trois cycles, plus de 40% sont représentés par des HAP à 4 cycles et environ 29% des HAP lourds à cinq et six cycles.

IV.3.5.3. Fraction intermédiaire 0.16-0.63mm brut

La majorité des composés sont des HAP à 4 cycles pour près de 54%, seulement 16% environ sont des HAP légers à deux ou trois cycles et 30 % des HAP lourds.

IV.3.5.4. Fraction fine <0.16mm brut

La part des HAP légers représente environ 16% du total des 16 HAP, 43% sont des HAP à 4 cycles. La proportion des HAP à 5 et 6 cycles atteint 41%.

IV.3.5.5. Fraction 0.63-20mm broyée

La part des HAP 2 et 3 cycles représente 20%, celle des HAP 4 cycles environ 49% enfin celle des HAP lourds 31%.

IV.3.5.6. Fraction intermédiaire 0.16-0.63mm broyée

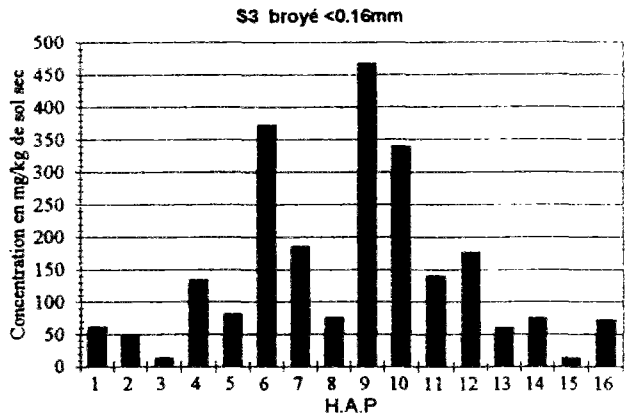
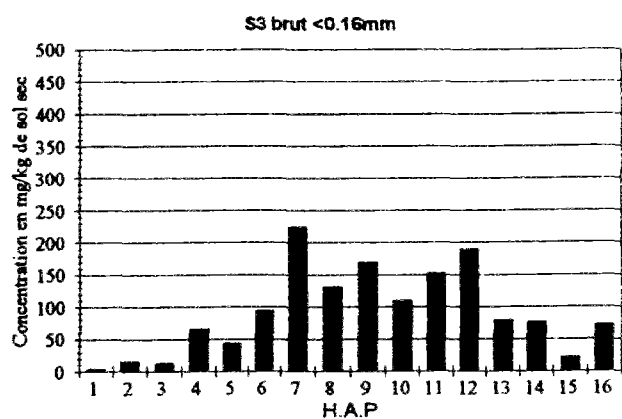
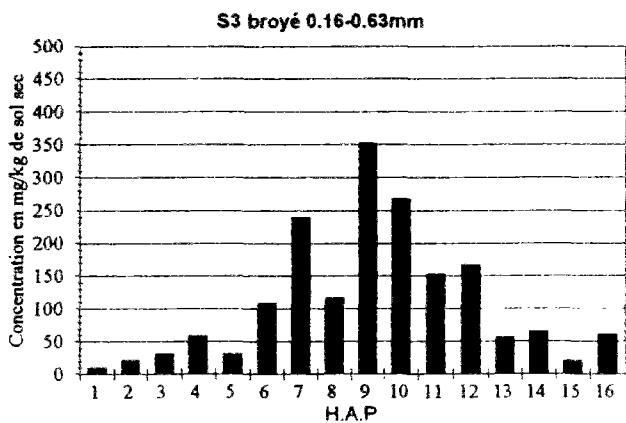
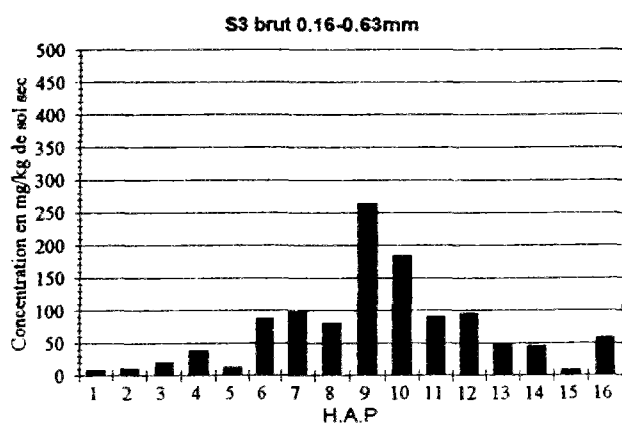
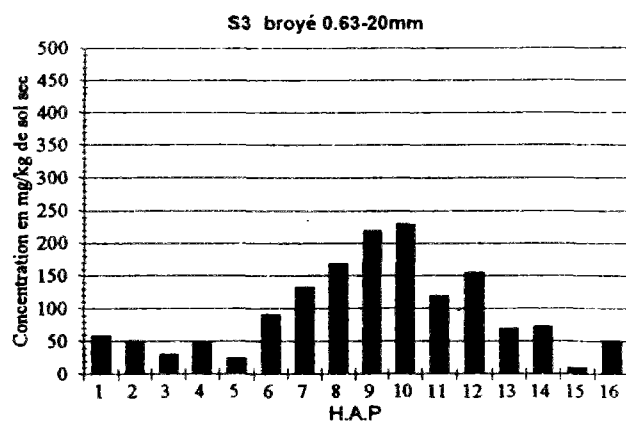
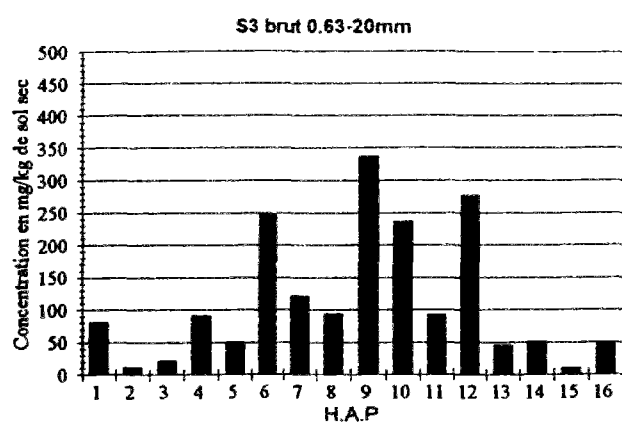
Les HAP "légers" sont représentés autour de 15%. La majorité étant représentée par les HAP à 4 cycles pour 55%, de même, la proportion des HAP lourds détectés dans les fractions fines <0.16mm est de 30%

IV.3.5.7. Fraction fines <0.16mm

La part des HAP légers est aussi importante et oscille autour de 31%, celle des HAP à 4 cycles autour de 46% et celle des HAP lourds à plus de 23%.

D'un point de vue global, il est remarquable que la concentration des HAP 5 et 6 cycles soit diminuée lorsqu'on passe du matériau brut au matériau broyé, quelque soit les fractions granulométriques.

Ces variations d'évolution sont dues en grande partie à l'hétérogénéité des goudrons. En effet, si l'on considère deux éléments de goudron qui peuvent être en apparence identiques (éléments de taille et de diamètre équivalent (boulette)), ces derniers pourront présenter des concentrations en HAP très variables.



1 Naphtalène
2 Acénaphène
3 Acénaphthylène
4 Anthracène
5 Fluorène
6 Phénanthrène

7 Benzo(a)anthracène
8 Chrysène
9 Fluoranthène
10 Pyrène

11 Benzo(a)pyrène
12 Benzo(b)fluoranthène
13 Benzo(ghi)pérylène
14 Benzo(k)fluoranthène
15 Dibenzo(a,h)anthracène
16 Indéno(1,2,3)pyrène

Figure IV-5 : Répartition en mg/kg des 16 HAP au sein des différentes fractions granulométriques.

IV.3.6.INTERPRETATION DES RESULTATS-DISCUSSION

Si la répartition des concentrations de HAP éléments par éléments est irrégulière (tableau IV-4 et figure IV-5), cette irrégularité est due à l'hétérogénéité chimique du matériau étudié. L'analyse de leur répartition montre que, d'une manière globale, une majorité des composants détectés est représentée par des HAP à 4 cycles. Leur répartition se trouve centrée, pour leurs valeurs maximales, autour du fluoranthène et du pyrène, avec des apports d'environ 800 mg/kg de sol pour le fluoranthène et 500mg/kg pour le pyrène. Les produits étant assez uniformément répartis entre les trois fractions >0.63mm, 0.16-0.63mm et <0.16mm avec des apports voisins, voire largement supérieurs à 200mg/kg de sol sec, pour l'ensemble des échantillons analysés, à l'exception de la fraction de "brut" inférieure à 0.16mm (tableau IV-4).

Une tendance similaire semble se dégager pour les HAP 5 cycles en particulier pour le benzo(a)pyrène et le benzo(b)fluoranthène qui se retrouvent à des concentrations comprises entre 100 et 200mg/kg pour le benzo(a)pyrène et entre 100 et 300mg/kg pour le Benzo(b) fluoranthène quelques soient les fractions considérées (>0.63mm; 0.16-0.63mm; <0.16mm) avec des valeurs supérieures à 200mg/kg pour le sol total.

En revanche, en ce qui concerne les hydrocarbures aromatiques de moins de quatre cycles et les 5-6 cycles (benzo(ghi)pérylène; benzo(k)fluoranthène; dibenzo(a,h)anthracène; indéno(1,2,3)-pyrène) ils se retrouvent à des concentrations calculées inférieures à 100mg/kg pour la plupart, et inférieures à 200mg/kg pour leur apport total dans le sol.

IV.3.6.1.Influence de l'échantillonnage

Dans les résultats que nous venons de présenter, nous avons pu constater une répartition des concentrations variables entre les différents échantillons et notamment en ce qui concerne les éléments grossiers (>0.63mm), où par exemple, la part totale des HAP est retrouvée nettement plus faible dans l'échantillon broyé, 27% contre 41% pour l'échantillon non broyé.

Dans le même sens, il est aussi remarquable qu'en comparant les deux types de résultats (S3 broyé / non broyé) obtenus pour les fractions fines inférieures à 0.16mm, nous avons constaté une forte tendance de concentrations des 16 HAP, avec des concentrations plus élevées en ce qui concerne les éléments préalablement broyés. Ainsi, la part totale des HAP représente plus de 40% dans les fractions inférieures à 0.16mm contre 27% dans les fractions grossières (Tableau IV-4).

Ces différences peuvent être attribuées pour les fractions grossières, et de façon la plus probable, à une hétérogénéité des matériaux utilisés qui étant plus grossiers en terme de granulométrie, sont susceptibles de contenir de façon plus hétérogène des HAP sous différentes configurations.

En effet, la séparation lors du quartage des échantillons, effectue un tri sur une quantité de matériau et non sur la qualité de répartition du polluant au sein même du matériau. Cette répartition de la pollution, malgré la préparation minutieuse des échantillons ne peut se faire d'une façon parfaitement homogène pour ces fractions grossières, car le simple fait d'avoir quelques agrégats de goudrons ou gouttelettes de goudron "pur" peut faire varier considérablement les teneurs lors de l'analyse. Ceci pourrait expliquer la dispersion relative des résultats et ce pour l'ensemble des éléments si l'on raisonnait élément par élément (HAP).

IV.3.6.2.Influence du broyage des échantillons

Broyer le matériau semble permettre d'augmenter l'accessibilité des HAP au solvant lors de l'analyse. Cette accessibilité accrue, conduit à chiffrer plus précisément la quantité "absolue" des HAP contenus dans la terre. Il apparaît alors, que le broyage préalable des échantillons permet d'obtenir une idée sur une "quantité maximale" de HAP accessibles à l'analyse, et qu'il soit

nécessaire lors de toutes les investigations analytiques de procéder à ce broyage, si l'on veut estimer la part totale "maximale" de HAP contenue dans un échantillon.

Il semble donc que l'accessibilité des HAP puisse être favorisée par ce mode opératoire, mais que cette opération réalisée sur du matériau présentant tant d'hétérogénéités de compositions de départ, influe nettement sur les résultats obtenus.

IV.3.7. Conclusion

L'approche de la répartition des composants chimiques (HAP) par fractions granulométriques peut donc être envisagée, mais celle-ci s'avère néanmoins problématique, du fait même des difficultés liées à l'analyse, et c'est plutôt en essayant de dégager une tendance de répartition globale des composés qu'il faut l'envisager. Vouloir interpréter en terme de précision, les résultats obtenus lors des analyses de sols reste une opération difficile, tant l'hétérogénéité de la répartition des HAP dans les sols d'anciennes usines à gaz est grande.

La représentativité du prélèvement effectué peut donc être facilement mise en cause au niveau des résultats analytiques.

Néanmoins, le tableau IV-4 et les figures associées (figure IV-5) permettent dans le cadre descriptif global de notre étude, de constater qu'une forte tendance de répartition des HAP détectables par CLHP sont des composés aromatiques polycycliques de trois, mais surtout de quatre voire cinq cycles.

Certains composés comme le BghiPL et composés plus lourds (6 cycles), ne semblent n'être présent qu'en faible quantité. Il s'agirait en fait d'un possible artefact de l'analyse lié au fait que les grosses structures polycycliques ont du mal à être solubilisées dans le solvant, et leur dosage peut s'en trouver sous estimé. De même, les HAP à 2 et 3 cycles peuvent être sous estimés par les nombreuses réactions d'évaporation, d'oxydation...que l'échantillon peut subir lors des manipulations préalables.

Analyse des résidus après traitement thermique à 500°C après 18 heures.

Les analyses des résidus des calcinations à 300°C et à 500°C de l'échantillon granulométrique S3 ont été réalisées par CLHP, mais aucun composé aromatique polycyclique recherché n'a pu être détecté (seuil de détection 5ppm). Aussi, ces mêmes échantillons ont été passés par chromatographie en phase gazeuse couplée spectrométrie de masse (GC/MS). Dans le cas de l'échantillon S3, aucun composé des 16 HAP n'a pu être détecté à des teneurs conséquentes. Seuls quelques uns dont l'identification reste difficile ont été mis en évidence, à l'état de trace (dérivés). L'hypothèse selon laquelle la température de calcination à 500°C pendant 18 heures selon notre mode opératoire émis au chapitre "caractérisation" (chapitre II) est donc bien validée par l'analyse.

IV.4. Analyse d'eau des percolats des cellules et des colonnes.

Les produits de percolation des trois essais réalisés en colonnes et du test réalisé en cellule ont été analysés par un laboratoire extérieur C. Les résultats obtenus sont récapitulés dans les tableaux IV-9 à IV-12.

Avertissement : Pour des raisons de lisibilité des figures, les représentations graphiques des résultats qui sont exprimés dans ces tableaux, reflètent les valeurs maximales données lors de l'analyse, c'est à dire que par exemple lorsqu'une concentration est donnée avec une valeur inférieure au seuil de détection, nous avons choisi de prendre la valeur maximale indiquée (ex : $<0.25\mu\text{g/l}$ sera représentée à $0.25\mu\text{g/l}$). Ces représentations graphiques sont donc "maximalistes". Les limites de quantification des appareils de dosage du laboratoire sont données en annexe . Dans tous les essais effectués, le sol de référence est le sol S3, dont la teneur des 16HAP est rappelée dans chaque tableau comme référence de sol.

IV.4.1. Résultats d'analyse de percolation en cellule et en colonne de la terre polluée non traitée

IV.4.1.1. Résultats du test effectué en cellule de percolation

Les résultats d'analyses du test effectué en cellule de percolation sont résumés dans le tableau IV-9.

CELLULE 1	Nombre de cycles	Référence Sol [mg/kg]	analyse d'eau méthode NFT90-115 résultats exprimés en $\mu\text{g/l}$					
			CELL1 18.05.95	CELL2 23.05.95	CELL3 06.06.95			
Naphtalène	2	1989	30.87	14.46	8.64			
Acénaphène	3	888	0.28	0.41	<0.25			
Acénaphthylène	3	413	<0.25	<0.25	<0.25			
Anthracène	3	458	1.29	0.07	0.08			
Fluorène	3	488	0.99	<0.25	<0.25			
Phénanthrène	3	1236	5.89	0.27	0.20			
Benzo (a) anthracène	4	525	2.43	<0.10	<0.10			
Chrysène	4	228	5.92	0.15	0.13			
Fluoranthène	4	1402	13.48	<0.1	<0.1			
Pyrène	4	941	8.26	0.24	0.29			
Benzo (a) pyrène	5	380	10.58	0.21	0.18			
Benzo (b) fluoranthène	5	530	7.47	0.17	0.14			
Benzo (g,h,i) pérylène	5	257	6.44	0.29	0.28			
Benzo (k) fluoranthène	5	218	3.98	0.10	0.08			
Dibenzo (a,h) anthracène	5	161	2.43	<0.10	<0.10			
Indéno (1,2,3cd) pyrène	6	271	5.42	0.14	0.11			
TOTAL des 16 HAP mini/max		10385	105.73	105.98	16.51	17.31	10.13	11.18
Volume d'eau écoulé au prélèvement en litres			2	324	448			
Temps de percolation cumulé en heures			0.083	26.161	46.344			
Perméabilité en m/s			$2.5.10^{-3}$	8.10^{-6}	5.10^{-6}			

Tableau IV-9 : Analyse des 16HAP dans la phase aqueuse. Cellule de percolation.

IV.4.1.2. Résultats du test effectué en colonne de percolation.

COLONNE 3	Nombre de cycles	Référence Sol [mg/kg]	analyse d'eau méthode NFT90-115-résultats exprimés en µg/l							
			STC 1.1		STC 1.2		STC 1.3		STC 1.4	
Naphtalène	2	1989	1.3		0.44		<0.1		<0.1	
Acénaphtène	3	888	<0.2		0.10		<0.25		<0.2	
Acénaphthylène	3	413	10.9		<0.25		<0.20		<0.2	
Anthracène	3	458	0.3		0.17		<0.05		<0.1	
Fluorène	3	488	<0.2		0.05		<0.25		<0.2	
Phénanthrène	3	1236	0.4		0.55		<0.20		<0.2	
Benzo (a) anthracène	4	525	2.7		3.69		0.64		<0.1	
Chrysène	4	228	1.8		2.5		0.46		0.1	
Fluoranthène	4	1402	5.3		4.92		<0.25		0.3	
Pyrène	4	941	6.1		4.87		0.78		0.3	
Benzo (a) pyrène	5	380	5.3		4.11		0.70		0.1	
Benzo (b) fluoranthène	5	530	3.1		3.37		0.60		0.1	
Benzo (g,h,i) pérylène	5	257	1.3		3.09		0.94		<0.1	
Benzo (k) fluoranthène	5	218	1.5		1.67		0.81		<0.1	
Dibenzo (a,h) anthracène	5	161	1.0		1		0.16		<0.1	
Indéno (1,2,3cd) pyrène	6	271	2.1		2.5		0.48		<0.1	
TOTAL des 16 HAP min/max		10385	43.1	43.5	33.03	33.28	6.67	6.87	0.9	2.5
Volume d'eau écoulé au prélèvement en litres			1.3		18.8		129.4		180.6	
Temps de percolation cumulé en heures			0.083		1.17		33		62.39	
Perméabilité en m/s			2.10 ⁻⁴		1.3.10 ⁻⁴		3.9.10 ⁻⁵		2.2.10 ⁻⁵	

Tableau IV-10 : Analyse des 16HAP dans la phase aqueuse. Colonne 4.

IV.4.1.3. Résultats d'analyse après test de percolation en colonne sur de la terre polluée pré-traitée à l'aide d'agents chimiques.

IV.4.1.3.1 Résultats d'analyse d'un test de percolation en colonne.
Echantillon pré-traité avec le surfactant TRITON X-102.

COLONNE 5	Nombre de cycles	Référence Sol [mg/kg]	analyse d'eau méthode NFT90-115-résultats exprimés en µg/l							
			S/STA C2.-1		S/STA C2-2		S/STA C3-3		S/STA C3-4	
Naphtalène	2	1989	141		<0.1		0.41		<0.1	
Acénaphtène	3	888	208		<0.25		<0.25		0.53	
Acénaphthylène	3	413	<0.2		<0.25		<0.25		0.42	
Anthracène	3	458	4		<0.05		<0.05		<0.05	
Fluorène	3	488	<0.2		<0.25		<0.25		<0.25	
Phénanthrène	3	1236	54		<0.2		<0.2		<0.1	
Benzo (a) anthracène	4	525	21		0.12		<0.10		<0.1	
Chrysène	4	228	13		0.09		0.05		0.06	
Fluoranthène	4	1402	95		<0.25		<0.25		<0.25	
Pyrène	4	941	151		0.18		0.10		0.11	
Benzo (a) pyrène	5	380	23		0.11		0.05		0.08	
Benzo (b) fluoranthène	5	530	16		0.11		0.06		0.10	
Benzo (g,h,i) pérylène	5	257	12		0.18		0.10		<0.1	
Benzo (k) fluoranthène	5	218	8		0.05		<0.05		0.05	
Dibenzo (a,h) anthracène	5	161	6		<0.10		<0.10		<0.1	
Indéno (1,2,3cd) pyrène	6	271	9		<0.10		<0.10		<0.1	
TOTAL 16 HAP (min/max)		10385	761	761.4	0.84	2.39	0.77	2.37	1.4	2.25
Volume d'eau écoulé au prélèvement en litres			2.5		66		109		252	
Temps de percolation cumulé en heures			43		215		320		686	
Perméabilité en m/s			8.7.10 ⁻⁷		3.8.10 ⁻⁶		5.8.10 ⁻⁶		5.1.10 ⁻⁶	

Tableau IV-11 : Analyse des 16HAP dans la phase aqueuse. Colonne 5.

IV.4.1.3.2. Résultats d'analyse d'un test de percolation en colonne.
Echantillon pré-traité avec le réactif de FENTON.

COLONNE 6

	Nombre de cycles	Référence Sol [mg/kg]	analyse d'eau méthode NFT90-115-résultats exprimés en µg/l							
			F/STA C3-1	F/STA C3-2	F/STA C3-3	F/STA C3-4				
Naphtalène	2	1989	<0.1	0.11	<0.1	0.2				
Acénaphène	3	888	<0.2	<0.25	<0.25	<0.25				
Acénaphthylène	3	413	<0.2	<0.25	<0.25	0.36				
Anthracène	3	458	0.3	<0.05	<0.05	<0.05				
Fluorène	3	488	<0.2	<0.25	<0.25	<0.25				
Phénanthrène	3	1236	<0.2	<0.2	<0.2	<0.1				
Benzo (a) anthracène	4	525	2.61	0.17	0.17	<0.01				
Chrysène	4	228	1.7	0.11	0.12	<0.05				
Fluoranthène	4	1402	5.1	0.25	<0.25	<0.25				
Pyrène	4	941	0.7	0.22	0.20	<0.1				
Benzo (a) pyrène	5	380	4.7	0.18	0.20	<0.05				
Benzo (b) fluoranthène	5	530	2.7	0.15	0.19	<0.05				
Benzo (g,h,i) pérylène	5	257	1.9	0.25	0.32	<0.1				
Benzo (k) fluoranthène	5	218	1.7	0.08	0.10	<0.05				
Dibenzo (a,h) anthracène	5	161	5.1	0.1	0.14	<0.1				
Indéno (1,2,3cd) pyrène	6	271	0.4	0.13	0.16	<0.1				
TOTAL 16 HAP (max/min)		10385	26.91	27.81	1.75	2.75	1.6	2.95	1	2.52
Volume d'eau écoulé au prélèvement en litres			2.5	57	89	220				
Temps de percolation cumulé en heures			43	215	264	673				
Perméabilité en m/s			1.10 ⁻⁶	4.4.10 ⁻⁶	4.7.10 ⁻⁶	4.6.10 ⁻⁶				

Tableau IV-12 : Analyse des 16HAP dans la phase aqueuse. Colonne 6 Réactif de FENTON.

IV.4.2. Analyse des résultats

IV.4.2.1. Test de percolation mélange : terre + eau

IV.4.2.1.1. Test en de percolation forcée en cellule avec contre pression latérale.

IV.4.2.1.1.1. Evolution globale.

Au vu des résultats obtenus après les différentes analyses effectuées à des intervalles de temps assez grands (0,08; 26; 46 heures), nous pouvons constater une évolution globale assez rapide de diminution des teneurs en HAP supérieurs à 4 cycles. Il est remarquable (tableau IV-9), qu'un composé comme le naphtalène se retrouve dans la phase aqueuse à des concentrations élevées proches de 31 µg/l puis décroît régulièrement sur les trois prélèvements effectués. (cf. figure IV-6)

IV.4.2.1.1.2. Evolution par HAP

Les HAP présents dans la phase aqueuse, après un lessivage de l'échantillon par 2 litres d'eau à une pression de percolation de 0.04MPa, sont représentés essentiellement, hormis le naphtalène et le phénanthrène, par des HAP de 4, 5 et 6 cycles à des concentrations voisines de 5 µg/l.

Au deuxième prélèvement soit 26 heures après le début de l'essai, les concentrations obtenues, après lessivage de l'échantillon sont négligeables dans l'ensemble et proches des seuils de détection, exception faite du naphtalène que l'on retrouve à des concentrations voisines de 15 µg/l.

La perméabilité du sol étant de 10^{-5} m/s au premier prélèvement celle-ci diminue ensuite autour de 10^{-6} m/s pour les deux derniers prélèvements. La quantité d'eau ayant circulé dans l'échantillon entre le premier prélèvement et le deuxième est de 324 litres, au troisième prélèvement, la quantité d'eau écoulée par rapport au second est de 124 litres.

Lors de l'analyse du dernier prélèvement, après un lessivage de l'échantillon par 448 litres d'eau, les seuils de détection sont pratiquement tous atteints pour la plupart des HAP, et on ne retrouve dans la phase aqueuse que le naphthalène à des concentrations inférieures à $10\mu\text{g/l}$.

La concentration totale des HAP passés en phase aqueuse a diminué de $106\mu\text{g/l}$ en début d'essai à $11\mu\text{g/l}$ après lessivage par 450 litres d'eau environ. Sur les $106\mu\text{g/l}$ de HAP détectés en début d'essai, 29% étaient représentés par le naphthalène et 71% par des HAP 4, 5 et 6 cycles, alors qu'en fin d'essai, c'est la part du naphthalène qui constitue 77% des résultats, les 23% restant étant à des teneurs voisines de zéro.

Les valeurs de l'analyse obtenues indiquent que les HAP 5 cycles présentent des concentrations dans l'eau supérieures aux taux de solubilités de chaque composé. Ces valeurs sont résumées dans le tableau IV-13.

IV.4.2.1.2. Test en colonne

IV.4.2.1.2.1. Evolution globale

L'évolution globale des concentrations de HAP obtenues en phase aqueuse semble tendre vers une diminution progressive et régulière. Contrairement aux résultats précédemment décrits, la part des HAP facilement solubilisables tel le naphthalène ne semble pas importante et est déjà très faible au premier prélèvement puisque voisine de $1\mu\text{g/l}$ celle-ci ne représente que 3% du total maximal des HAP obtenus ($43.5\mu\text{g/l}$ cf. tableau IV-10).

En revanche certains points exceptionnels peuvent être mentionnés; en effet nous pouvons remarquer une teneur élevée d'Acénaphthylène, dès le premier prélèvement, dosé en phase aqueuse à une concentration de $10.9\mu\text{g/l}$. Cette valeur exceptionnelle ne se retrouve pas ensuite dans les autres analyses puisque sur tous les autres prélèvements la concentration de ce composé est inférieure au seuil de détection de l'appareil utilisé.

IV.4.2.1.2.2. Evolution par HAP

En revanche, si la part des HAP trois cycles est faible sur l'ensemble des dosages effectués et le plus souvent inférieure à $1\mu\text{g/l}$, exception faite du premier dosage pour l'acénaphthylène, celle des HAP 4, 5 et 6 cycles diminue progressivement jusqu'à atteindre des valeurs négligeables inférieures à $1\mu\text{g/l}$ après passage de 130 litres d'eau (tableau IV-10).

La part des HAP 4 cycles, reste relativement constante au cours des différents prélèvements et représente environ 37% du total des HAP dans l'eau au premier prélèvement, 48% au deuxième et 31% au troisième et 28% au dernier.

En revanche la part des HAP 5 et 6 cycles, bien que dosés à des taux de concentrations inférieurs à $5\mu\text{g/l}$ représente 33, 47, 45, et 24% des quatre dosages effectués, avec des concentrations moyennes qui passent de $2\mu\text{g/l}$ environ en début d'essai à $7\mu\text{g/l}$ puis 4 et zéro en fin d'essai après 63 heures de percolation et 181 litres d'eau écoulés, pour une perméabilité moyenne de l'ordre de 1.10^{-4} m/s.

Au niveau des HAP 5 cycles nous constatons aussi des valeurs de concentrations supérieures aux seuils de solubilité (tableau IV-13).

IV.4.2.2. Test de percolation mélange : terre pré-traitée + eau

IV.4.2.2.1. Test sur colonne + terre pré-traitée au surfactant TRITON X102

IV.4.2.2.1.1. Evolution globale

L'analyse du tableau IV-11 et de la figure IV-8 permet de constater que la préparation de la terre à l'aide d'un surfactant a pour effet d'augmenter sensiblement les concentrations de certains HAP solubilisés dans l'eau.

La tendance globale d'évolution des teneurs, en revanche, est une diminution rapide, d'un prélèvement à l'autre, puisqu'au bout d'un lessivage de l'échantillon par 66 litres d'eau, les teneurs en HAP deviennent négligeables et toutes inférieures à $1\mu\text{g/l}$. La teneur totale en HAP passés dans la phase aqueuse est ainsi passée de $761\mu\text{g/l}$ après 2.5 litres d'eau écoulés et 43 heures de percolation ($k=8.10^{-7}\text{m/s}$), à $2.4\mu\text{g/l}$ après 215 heures de percolation et 66 litres d'eau écoulés ($k=4.10^{-6}\text{m/s}$). Ces valeurs restent constantes globalement et très inférieures à $1\mu\text{g/l}$ pour chaque composés après 13 jours de percolation.

IV.4.2.2.1.2. Evolution par HAP

De même, si l'on se réfère toujours au tableau IV-11, il est remarquable que, comparativement à tous les essais effectués simplement en mettant le sol pollué en contact avec l'eau (test en cellule ou en colonne), les concentrations obtenues avec le surfactant sont nettement plus importantes. Ainsi, nous atteignons des seuils de concentrations dans l'eau nettement supérieurs pour les HAP 3 cycles tels le naphthalène et l'acénaphthène, de l'ordre de 140 à $200\mu\text{g/l}$, alors que lors des tests de percolation effectués sans pré-traitement, ces concentrations dans la phase aqueuse n'atteignaient que des seuils bien inférieurs, de l'ordre de $30\mu\text{g/l}$ et des valeurs inférieures à $1\mu\text{g/l}$ pour les deux échantillons respectifs, et ce, en valeurs maximales.

Cette même tendance d'augmentation soudaine des concentrations dans la phase aqueuse est observable pour certains HAP de 4 cycles avec notamment des valeurs maximales centrées sur le fluoranthène et pyrène, autour de 100 à $150\mu\text{g/l}$, dès le premier prélèvement, puis nous observons une forte diminution vers des valeurs négligeables.

De plus, il est encore remarquable, pour les composés 4 et 5 cycles, que les concentrations obtenues soient largement supérieures aux seuils des solubilités respectives des différents composés dosés. Ces différentes valeurs sont reportées dans le tableau IV-13.

IV.4.2.2.2. Test sur colonne + terre pré-traitée avec le réactif de FENTON.

IV.4.2.2.2.1. Evolution globale

Comme dans les résultats d'analyse cités précédemment, la tendance générale d'évolution montre une diminution globale des teneurs en HAP en fonction du temps de percolation et du volume d'eau écoulé.

En revanche, si le surfactant permet d'augmenter les teneurs en HAP dans la phase aqueuse, au vu des résultats d'analyse (tableau IV-12), les concentrations en HAP ne sont pas très élevées et ne dépassent guère 5µg/l pour l'ensemble des 16 HAP pris séparément. En ce qui concerne les résultats obtenus avec le réactif de FENTON, la diminution générale des concentrations en phase aqueuse va de 27µg/l à environ 3µg/l après respectivement 2.5 et 89 litres d'eau écoulés et des temps de percolation respectifs de l'ordre de 43 heures à 11 jours.

IV.4.2.2.2.2. Evolution par HAP

L'observation du tableau IV-12 permet de montrer que la teneur des HAP 3 cycles dans la phase aqueuse reste inférieure à 1µg/l, en revanche, la part des HAP 4 cycles et des HAP 5 et 6 cycles est plus importante, ainsi certains composés se retrouvent dans la phase eau à des concentrations supérieures à leur seuil de solubilité. En observant les résultats obtenus, nous constatons que pour les éléments suivants : BaPYR, BbFLT, BghiPL, BkFLT, et le dBahANT, les concentrations obtenues dépassent leurs valeurs de solubilité dans l'eau. Ces valeurs sont pour l'ensemble des tests effectués, résumées sur le tableau IV-13.

			Valeurs obtenues par analyse exprimées en µg/l				Solubilité des éléments exprimées en µg/l
			Références échantillons				
HAP	Abréviations	Nombre de cycles	Cellule	Colonne 4	Colonne 5	Colonne 6	
Pyrène	PYR	4	*	*	151	*	132
Benzo(a)pyrène	BaPYR	5	10.58	5.3	23	4.7	0.8
Benzo(b)fluoranthène	BbFLT	5	7.47	3.1	16	2.7	1.2
Benzo(g,h,i)pérylène	BghiPL	5	6.44	1.3	12	1.9	0.26
Benzo(k)fluoranthène	BkFLT	5	3.98	1.5	8	1.7	0.55
Dibenzo(a,h)anthracène	dBahANT	5	2.43	1	6	5.1	0.5

Tableau IV-13 : Comparaison des seuils de solubilité et des résultats analytiques obtenus lors des premiers dosages pour les différents échantillons S3 soumis aux tests de percolation. (*: la valeur est inférieure au seuil de solubilité)

IV.5. INTERPRETATION DES RESULTATS - DISCUSSION

Plusieurs observations peuvent être faites à partir de la description des différents essais que nous venons de réaliser.

Tout d'abord, il est intéressant de voir que dans leur globalité, les résultats obtenus expriment des tendances générales de concentrations en HAP dans la phase aqueuse assez faibles dans l'ensemble, voire à long terme, négligeables lorsque l'on observe tous les résultats obtenus, après quelques heures ou jours de percolation.

De plus, nous pouvons aussi constater que les décroissances enregistrées à différents intervalles de temps sont régulières et tendent toutes vers des valeurs négligeables. Il est aussi remarquable, lors des essais réalisés à l'eau uniquement, et lorsque les échantillons n'ont subi aucun pré-traitement, que les concentrations globales en HAP oscillent dans leurs plus fortes valeurs autour

de 100µg/l dans les premiers instants du lessivage de l'échantillon, dans le cas d'une percolation forcée sous pression (en cellule), contre des valeurs qui oscillent autour de 50µg/l dans le cadre d'une percolation descendante gravitaire à pression de percolation 10 fois plus faible.

Par comparaison avec les seuils autorisés par les références hollandaises 1994 (cf. § I.3.4.2) nous constatons que tous les éléments présentent des teneurs en HAP supérieures à la réglementation, lors du début des essais.

En revanche, les valeurs données par l'analyse en ce qui concerne les éléments dosés à long terme (quelques heures à jours), montrent des concentrations dans l'eau inférieures, pour la plupart aux valeurs guides, à l'exception de quelques éléments. Pour les résultats obtenus en cellule de percolation, le chrysène présente des concentrations supérieures aux valeurs guides (0.13µg/l au lieu de 0.05), celles du benzo(a) pyrène sont multipliées par 3.5 (0.18µg/l), aussi, celles du benzo(b)fluoranthène sont multipliées par trois, celles de l'indéno(1,2,3, cd)pyrène sont multipliées par deux, et ce, après lessivage par 450 litres d'eau.

Dans le même esprit, cette tendance est observable pour les éléments dosés à l'issue du test de percolation en colonne, où les mêmes composés (CHY, BaPYR, BaFLT) présentent des valeurs multipliées par deux par rapport aux valeurs guides de références.

D'autre part, il est intéressant de voir que sur l'ensemble des résultats, lorsque des HAP sont dosés par l'analyse dans la phase aqueuse, les HAP qui apparaissent à l'analyse, sont généralement ceux à 4 ou 5 cycles. Or plus le nombre de cycles augmentent, plus la solubilité des éléments diminue. Cette constatation réalisée sur la totalité des essais semble contradictoire avec le fait que ces éléments soient particulièrement hydrophobes et donc difficilement solubilisables dans l'eau. Il semble alors possible et très probable que :

- soit les HAP sont adsorbés sur des petites particules fines en suspension dans l'eau, et l'analyse quantifie en fait ces particules fines, ce qui peut alors expliquer les valeurs obtenues supérieures aux taux de solubilité.

- soit, l'analyse elle-même et son protocole peuvent être mis en cause. Il s'est avéré en réalité que les percolats ont été filtrés sur des filtres de mailles égale à 0,45µm. Or, comme nos échantillons présentent généralement une quantité de fines inférieures à 40µm non négligeable (environ 10 à 15%, cf. chapitre caractérisation), il n'est alors pas impossible que ces éléments ultra-fins restent en suspension dans la phase aqueuse et interfèrent sur les résultats obtenus. Pour remédier à ce problème, il serait intéressant de filtrer correctement les percolats et de les centrifuger à haute vitesse, avant analyse.

En observant les résultats des essais réalisés à l'eau, en cellules et en colonnes, on peut remarquer que le naphthalène, produit hautement soluble (solubilité d'environ 32mg/l), ne se retrouve qu'en faible quantité à des concentrations inférieures à 2µg/l en début d'essai pour le test effectué en colonne, alors que cette valeur est de l'ordre de 30µg/l pour le test effectué en cellule, sous pression. Cette valeur diminue progressivement et reste détectable, même après lessivage par 400 litres d'eau (les autres éléments ayant des valeurs de concentrations inférieures à 0.1µg/l), alors qu'elle ne l'est plus lorsque l'on passe au test en colonne après seulement lessivage de l'échantillon par 180 litres d'eau.

Dans l'optique de transfert des polluants dans la phase aqueuse, les résultats et les hypothèses de transport des HAP sur des particules ultrafines émis au paragraphe précédent, permettent de réaliser l'approche d'une estimation possible des voies de transfert des polluants d'un milieu à l'autre.

En effet, même si les erreurs commises lors des phases de préparation pour l'analyse, c'est à dire mauvaise filtration des percolats et absence de centrifugation efficace, induisent des quantités de HAP alors surestimées, ces artefacts permettent d'envisager une voie possible de transfert des HAP dans la phase aqueuse. Ces derniers passant d'un milieu à l'autre en étant liés à des particules ultrafines restées en suspension dans l'eau et pouvant alors migrer dans la phase aqueuse jusqu'à aller s'accumuler dans un autre compartiment géologique. Cette approche semble

pourrait alors expliquer certaines contaminations plus en aval des corps d'imprégnation de goudrons ou la contamination des eaux souterraines par ces matériaux restés en suspension.

En cellule de percolation sous pression, il semble que le relargage soit plus important. Ceci est dû probablement au fait que, sous pression, l'échantillon de sol est traversé par un fort flux d'eau, alors qu'en colonne, à plus faible pression l'échantillon subirait peut-être un écoulement moins agressif vis à vis des particules fines, l'eau circulant probablement par des chemins préférentiels.

Néanmoins les valeurs obtenues dans cette approche analytique n'en restent pas moins faibles dans l'ensemble comparativement aux teneurs en HAP du sol de référence figurées dans les tableaux de résultats.

Les "fortes" teneurs en HAP détectées en début d'essai sont probablement attribuables à une restructuration du matériau lors de la mise en route des percolations. Il semble qu'après un premier lessivage du sol, les particules fines ne soient plus entraînées dans l'eau et qu'un régime de stabilisation s'établisse. Le relargage des polluants devient faible.

Il s'agit donc un phénomène de relargage minimum, dans des conditions de stabilité du régime d'écoulement. Des changements des conditions d'écoulement conduiraient probablement à une remise en suspension et une mobilisation des éléments fins et à une augmentation du risque de contamination de la nappe.

Analyse des 16 HAP

Echantillon 21 (terre+eau)

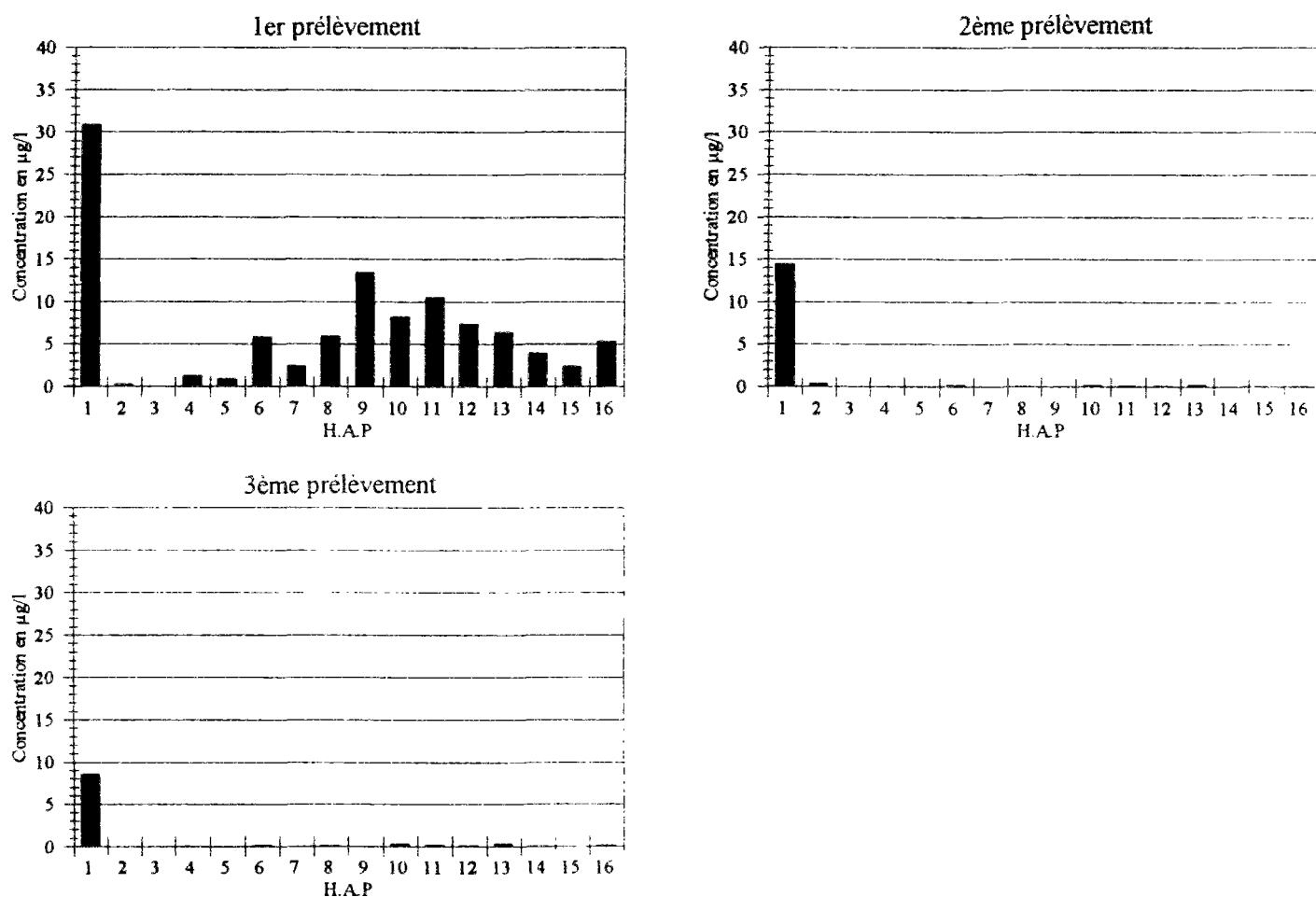


Figure IV-6 : Représentation graphique des résultats d'analyse obtenus sur test de percolation en cellule (terre+eau)

Analyse des 16 HAP

Echantillon 18 (terre + eau)

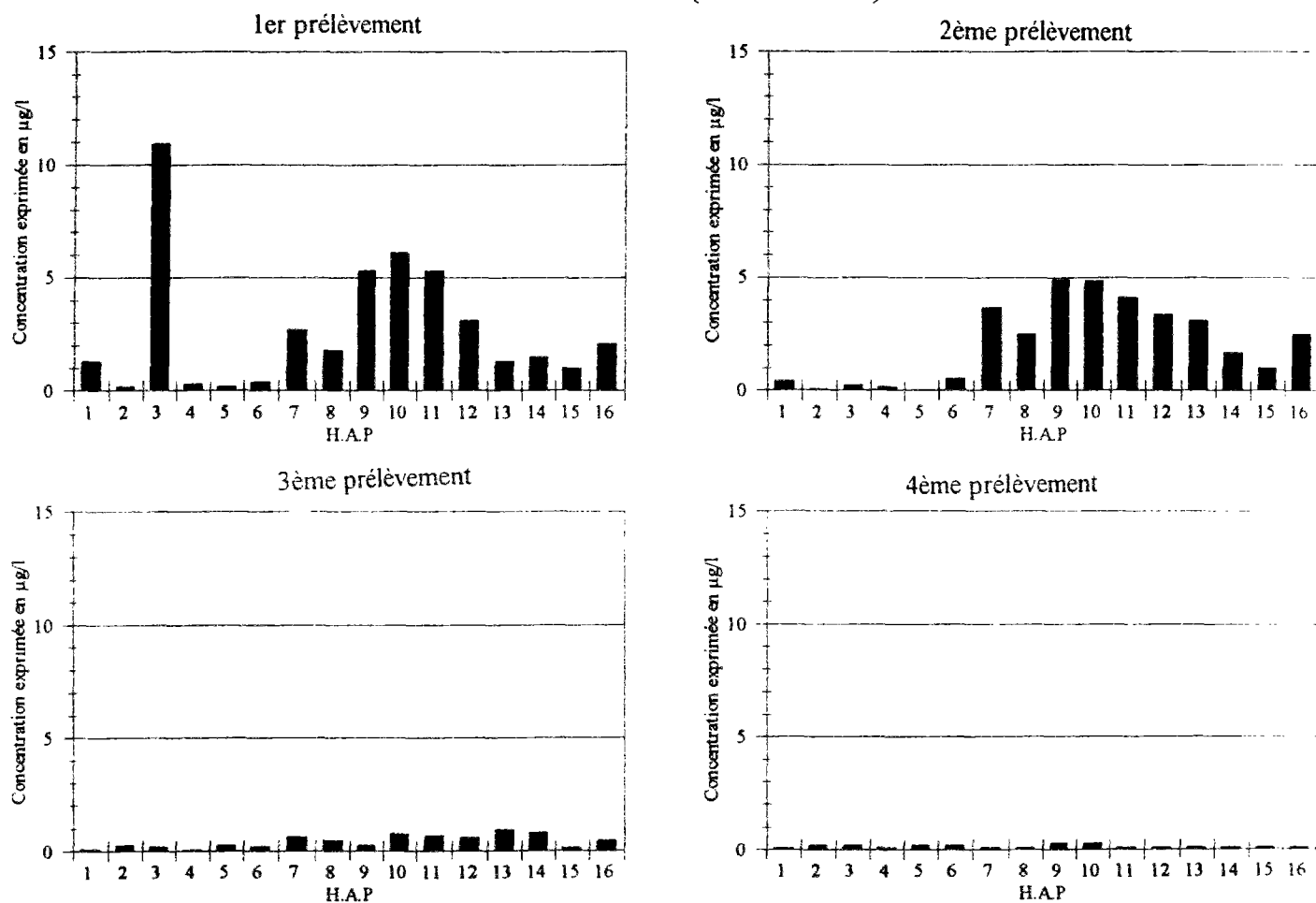


Figure IV-7 : Représentation graphique des résultats d'analyse obtenus sur test de percolation en colonne (terre+eau)

Analyse des 16 HAP

Echantillon 19 (terre + surfactant)

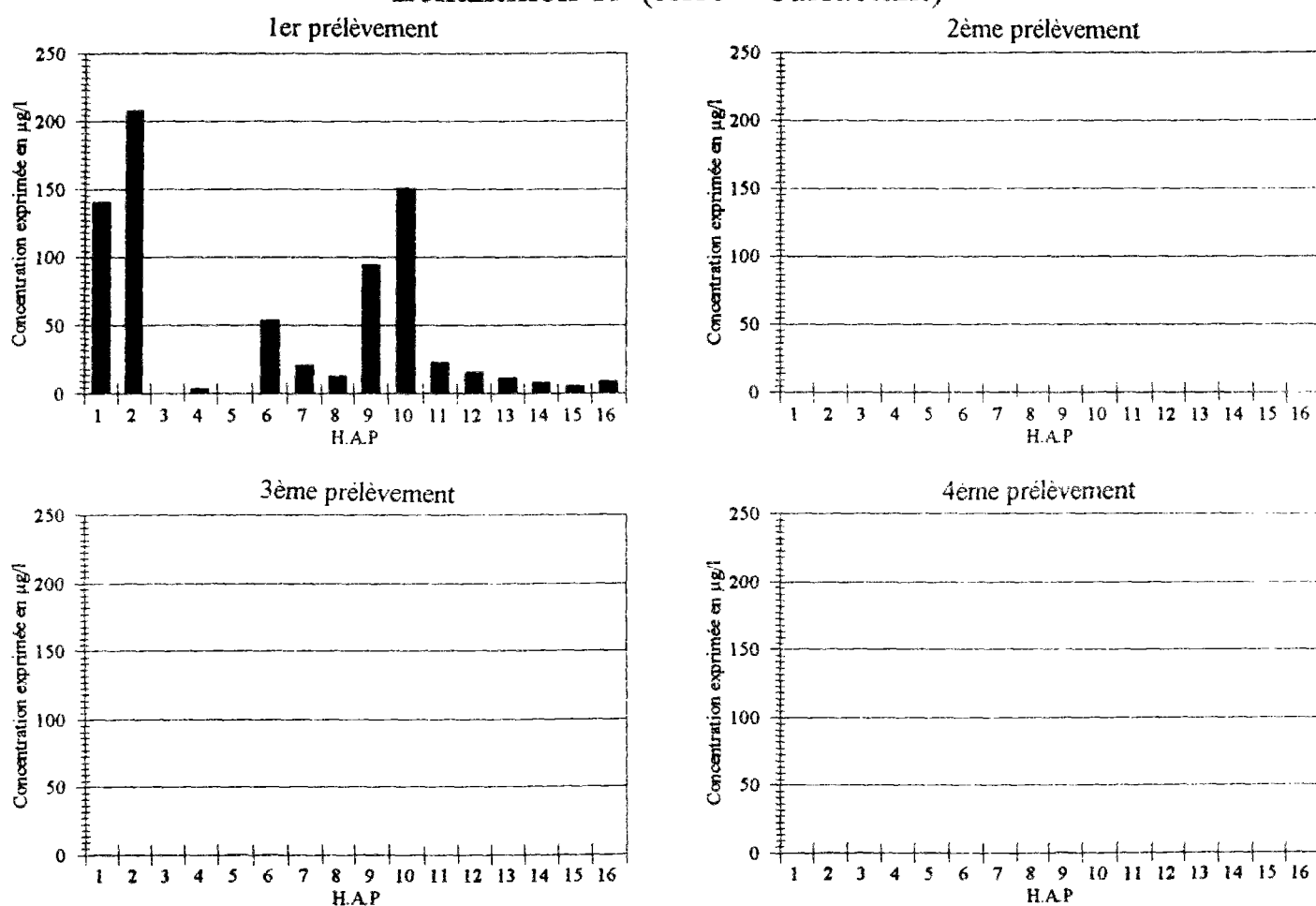


Figure IV-8 : Représentation graphique des résultats d'analyse obtenus sur test de percolation en colonne (terre pré-traitée au surfactant X102)

Analyse des 16 HAP

Echantillon 20 (terre + Fenton)

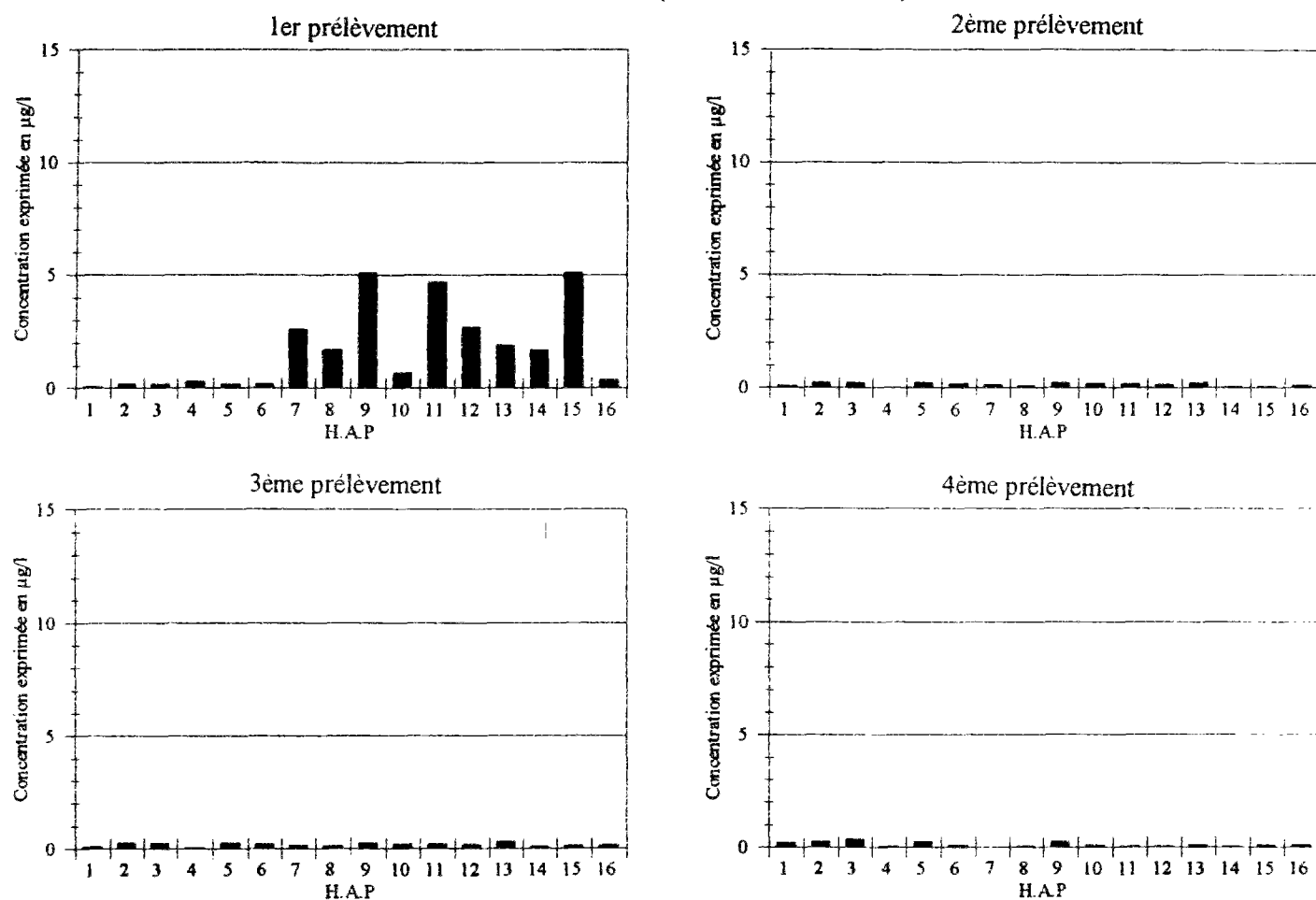


Figure IV-9 : Représentation graphique des résultats d'analyse obtenus sur test de percolation en colonne (terre pré-traitée au réactif de FENTON)

CONCLUSIONS - PERSPECTIVES

CONCLUSIONS-PERSPECTIVES

L'approche expérimentale abordée dans cette étude a permis :

La mise au point d'une méthodologie de caractérisation globale de la contamination d'un sol d'ancienne usine à gaz par des goudrons issu de la pyrolyse de la houille, la localisation des phases polluées au sein du sol, la mise en évidence d'un phénomène d'agglomération. L'analyse après traitement thermique, par pertes au feu, à 300°C et 500°C dans le cadre de notre étude, a montré que la méthode mise en oeuvre permet de mettre rapidement en évidence à la fois l'importance, la nature et l'allure de la pollution des sols par les goudrons de houille.

Dans nos conditions expérimentales, pour obtenir une dépollution totale (des 16 H.A.P. de la liste EPA), il a fallu chauffer les échantillons pendant 18 heures à 500°C. Les résultats de l'analyse des échantillons effectuée par chromatographie liquide haute performance, après traitement thermique, ont validé cette hypothèse.

Si la répartition globale du polluant pour le sol considéré est assez homogène dans l'ensemble, avec de forts taux d'agglomération, celle-ci montre que, pour un même type de pollution, une quantité semblable de goudron peut agglomérer plus ou moins les grains entre eux.

Les résultats obtenus montrent que l'échantillon de sol, considéré, sur le terrain, comme non pollué (S 4NP), ne peut pas être, dans le cadre de notre étude, considéré comme la référence du sol avant dépollution. Cette référence est obtenue par le sol pollué lui même après traitement thermique.

Il est donc possible de caractériser l'agglomération d'un sol pollué par des goudrons à l'aide d'essais géotechniques classiques.

Le comportement général du sol pollué au travers des phénomènes de circulation d'eau, le rôle de la teneur en eau initiale et du mode de mise en place des échantillons, sur la libre circulation de l'eau, ont été mis en évidence. Une étude préalable sur l'aptitude au compactage de ce type de sol pollué a été réalisée grâce à des tests de compactage Proctor normalisés. Les résultats obtenus ont montré qu'un sol pollué par des goudrons présentait un comportement et des propriétés mécaniques totalement différentes par rapport à son équivalent non pollué. Ainsi, nous avons pu mettre en évidence une sensibilité au compactage, dans une gamme restreinte de teneurs en eau initiales de mise en place des échantillons ($W_{opt}=16$ à 18%) et ce, quelques soient les fractions granulométriques considérées.

La teneur en eau initiale lors de la mise en place des terres contaminées, joue un rôle important sur les transferts de fluides à l'intérieur des sols pollués. Au total vingt et un essais de perméabilité ont été réalisés sur des échantillons de sables pollués, dans des perméamètres à charge constante, dont quinze essais de percolation sous pression avec contre pression latérale en cellules de percolation triaxiales, et six essais en colonnes par simple écoulement gravitaire. Dans tous les cas, les mesures effectuées, ont permis de mettre en évidence de fortes diminutions des perméabilités d'un facteur 10 à 100 pour atteindre des coefficients de perméabilité de l'ordre de 10^{-7} à 10^{-8} m/s après une restructuration des échantillons pendant la durée des essais. Ces fortes diminutions ont pu être expliquées par un important phénomène d'auto-colmatage des pores dû à la présence des goudrons. Ainsi lorsqu'il est compacté humide, le matériau ne laisse passer aucun écoulement d'eau, par contre, côté sec, un léger écoulement peu être constaté. Mais rapidement (quelques jours d'essais) la valeur de perméabilité atteinte : 10^{-8} m/s, permet de classer le matériau dans les sols peu perméables.

L'examen de la distribution des polluants dans le sol, et leur transfert vers l'eau, par l'analyse des 16 H.A.P par chromatographie liquide haute performance, a montré que la répartition de chacun des 16 H.A.P se réalise de manière aléatoire dans les phases du sol. Nous avons démontré que la fraction sableuse, majoritaire dans l'échantillon, bien que contenant la plus grande partie des goudrons, est en fait relativement moins polluée que les fractions fines. Il semble qu'il y ait une tendance à la concentration des H.A.P. dans les phases fines du sol.

Pour les échantillons étudiés, la part de polluants type H.A.P extractible et mesurable ne représente que 3% de la quantité totale de matière hydrocarbonée contenue dans le sol et mise en évidence par la caractérisation par pertes au feu à 500°C.

En terme de transfert des polluants du sol vers l'eau, les résultats d'analyse obtenus, semblent montrer une mobilisation importante des phases fines (<40µm) fixant les H.A.P, dès les premiers prélèvements.

Une hypothèse d'explication de ce phénomène peut être avancée, par une restructuration et une mise en suspension des particules fines vecteurs probables des H.A.P. dans le milieu lors de la circulation de l'eau.

Dans tous les cas, les observations et analyses réalisées montrent qu'à long terme, après lessivage important des échantillons pollués, les concentrations obtenues dans l'eau de percolation diminuent sensiblement.

Perspectives...

En terme d'étude de risque :

L'existence d'un risque dépend de plusieurs conditions qui sont généralement liées les unes aux autres et peuvent se classer comme suit :

- la présence de polluants qui s'évaluent selon la nature, leur concentration, ainsi que les quantités des produits (ici H.A.P et goudrons) déversés.
- la nature du milieu récepteur, et les usages présents et futurs du site.
- la probabilité d'accident. Pour qu'il y ait pollution il faut donc que la conjonction de ces trois facteurs soit défavorables et que le milieu soit touché dans son intégrité et sa qualité normale. Dans le cas des usines à gaz la pollution est déjà présente, et, c'est au travers de la migration des polluants que la problématique du risque prend toute son importance.

Les résultats sur le comportement mécanique, et ceux donnés par l'analyse des sols et des produits de percolation, permettent d'approcher l'évolution de la pollution. Dans cette optique, l'estimation directe de la mobilisation des polluants peut se faire par des mesures de concentrations dans les solutions de percolation à l'eau. Il n'en reste pas moins que nos mesures de laboratoire, ne donnent qu'une tendance maximaliste, qu'il faudrait valider par des mesures in situ, en se plaçant dans des conditions proches de la réalité, à différents points d'une zone cible polluée, ou bien près d'une zone d'excavation de terres en vérifiant dans ce cas particulier, si le décompactage d'un sol n'entraîne pas une restructuration et remobilisation des polluants, sous l'effet des eaux de ruissellement. En d'autres termes vérifier, si des phénomènes diffusifs existent.

En terme de traitement :

La connaissance des phases polluées dans un sol permet de préconiser certains traitements particuliers (lavage, incinération, ou traitement biologique).

Par exemple, lors d'un traitement biologique, il est possible de concevoir d'après nos résultats, une aptitude au tassement des terres en fonction de la teneur en eau de mise en place et de la hauteur de terre engagée. Or, pour un traitement en tas, -type bio-tertre-, la juste adéquation : de l'aération, de l'humidité et de l'apport en nutriments, conditionne la réussite du procédé de dépollution. L'utilisation d'engins de chantier compactant d'avance les terres (lors de leur mise en place), et diminuer d'emblée la libre circulation des fluides (air + eau) à l'intérieur du tertre. A long terme, le maintien dans de telles conditions, d'un taux d'humidité et d'une aération adéquate nécessaires au bon devenir d'un développement bactérien, risque d'être difficile à contrôler.

La hauteur des terres à mettre en oeuvre, le criblage judicieux de ces dernières et le taux d'humidité général de l'édifice, sont donc les paramètres essentiels à maîtriser afin qu'ils ne deviennent pas limitatifs au but recherché.

Au vu des résultats obtenus, il serait donc très intéressant d'étudier de manière détaillée les différentes possibilités des conditions du maintien de tels paramètres en fonction de différents types de terres et modes de mise en place.

Enfin, l'étude des transferts des H.A.P du sol vers l'eau, au travers différents modèles de configurations des pollutions rencontrées sur les sites d'anciennes usines à gaz, permettrait d'aborder pleinement la problématique en terme d'étude de risque. Les perspectives dans cette direction sont vastes et prometteuses.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

ABRIOLA, L. M., PINDER, G-F., (1985). A multiphase approach to the modeling of porous media contaminated by organic compounds, 1) equation development. *Water resources research* 21(1), 11-18.

ARNAUD, Cl., DUCREUX, J., POTTECHER, G., RAZAKARISOA, O., ZILLIOX, L. (1993) Un bassin expérimental de grandes dimensions pour l'étude de la décontamination de sites alluviaux pollués. *Environnement et Géotechnique*, Paris, 335-341. Presse des Ponts et Chaussées.

BACHAUSEN, P., (1990), Experiences with microbiological on-site decontamination of soil and buiding debris contaminated with solvents. *Contaminated Soil '90*, 983-988. F. Arendt & al, Kluwer Academic Pubishers.

BENOIT, M, A., (1992), Les procédés de décontamination des sols sur le territoire français. GDF-CERSTA-Mab/SA 92956. 16p. Diffusion restreinte.

BLUMER, M., (1976), Polycyclic Aromatic Compounds in Nature. *Scientific American*. n°234, 34-45.

BOERSMA, P., HERMINE, J.-P., McCANN, M. (1993). Décontamination par aération à l'azote et par extraction de la phase gazeuse d'un site pollué par des solvants organiques. *Environnement et Géotechnique*, Paris, 343-350. Presse des Ponts et Chaussées

BÖLHER, U., BRAUNS, J., HÖTZL, H., NAHOLD, M., (1990), Air injection and soil air extraction as combined method for cleaning contaminated sites, observation from test sites in sediments and solid rocks. *Contaminated Soil '90*, 1039-1044. F Arendt & al, Kluwer Academic Publishers.

BOUCHEZ, M., (1995), La biodégradation des hydrocarbures aromatiques polycycliques : métabolisme de substrats non conventionnels. Thèse de Doctorat de l'Ecole Nationale Supérieure des Industries agro-alimentaires. 245p.

BRUBAKER, G.-R., (1993), In situ bioremediation of groundwater, *Geotechnical Practice for waste Disposal*, 551-583, Chapman & Hall, Londre.

BURLE, S., (1992), Les procédés biologiques de décontamination des sites pollués. GDF-DETN-CERSTA BU/CB n°92 150, 15p.

BURLE, S., BENOIT, M-A., (1993), Les procédés biologiques de décontamination des sites d'anciennes usines à gaz. GDF-DETN-CERSTA-SDE/MAB n°93.940, 38p.

BURMANN, W., (1993). Groundwater remediation in situ using the vacuum-vaporizer-well (UVB) technology : basics, case studies. *Environnement et Géotechnique*, Paris, 351-359. Presse des Ponts et Chaussées.

CARTWRIGHT, K., HENSEL, B.-R., (1993), Hydrogeology, *Geotechnical Practice for waste Disposal*, 66-93, Chapman & Hall, Londre.

CAZALAS F., GAUTRON, R., (1993), Maîtriser les pollutions. Les éditions de l'environnement. Paris 307p.

CHAPUIS, R. P., GILL, D. E., KAARSTEN, B., (1989). Laboratory permeability tests on sand : influence of the compaction method on anisotropy. *Canadian Geotechnical Journal*, Vol 26, 614-622.

CHAPUIS, R. P., KAARSTEN, B., DAVENNE, L., (1989). Granular soils in rigid-wall permeameters: methods for determining the degree of saturation. *Canadian Geotechnical Journal*, Vol 26, 71-79.

CHAPUIS, R., (1995), Sols contaminés. Forum du Droit et des Affaires. Colloque du 28 juin 1995.

CLARKE, J.-H., REIBLE, D.-D., MUTCH, R.-D.Jr, (1994), Contaminant transport and behavior in the surface, Hazardous Waste site soil remediation, Theory and application of innovative technologies, pp1-49/560p, Ed : David J. Wilson, Ann N. Clarke, ISBN:0-8247-9107-X. Marcel Dekker, NYC-USA.

DANIEL E, D., ASCE, A. M.,(1984), Predicting Hydraulic Conductivity of Clay Liners, *Journal of Geotechnical Engineering* Vol 110, N°2,

DANIEL E, D., (1993), Early days of environmental geotechnology, *Geotechnical Practice for Waste Disposal*, 4-13, Chapman & Hall, Londres.

DANIEL E, D., (1990). Water content density criteria for compacted soil liners. *Journal of Geotechnical Engineering*, Vol 116, 12, 1811-1830.

DRUELLE, V., (1995). Traitement biologique, rapport interne. GDF DR-CERSTA Division Environnement-20pages.

DUMONT, A., (1994), Evaluation des risques sur les sites d'anciennes usines à gaz, Gaz de France. Ecole des Mines de Paris. Rapport de stage. 140p.

E.P.R.I : Electric Power Research Institute , (1992). Solvent Extraction for Remediation of Manufactured Gas Plant Sites. Final report. EPRI research project 3072-02, Palo Alto, USA.

GOUVENOT, D., (1993). L'innovation géotechnique au service de la protection de l'environnement souterrain. *Environnement et Géotechnique*, Paris, 201-208. Presse des Ponts et Chaussées.

GOURDON, R., BAYARD, R., (1994). Méthodologie d'étude et de valorisation de la bioremédiation des sols pollués : études des interactions abiotiques polluants/sols. Contrat RECORD 94-404, rapport n°2. INSA Lyon. laboratoire de Chimie Physique Appliquée et Environnement, 60 pages.

HOLROYD, M., ADAMS, D., (1992), In situ soil bioremediation, *Contaminated and polluted land* 92. Engineering technics press.

HORVAT, E., (1993). Restoration of contaminated soil/groudwater. *Environnement et Géotechnique*, Paris, 431-438. Presses des Ponts et Chaussées.

KARICKHOFF, S-W., (1984). Organic pollutant sorption in aquatic systems. *Journal of hydraulic engineering*, vol.110, pp707-735.

KEITH, L.H., TELLIARD, W.A., (1979), Priority pollutants I. A perspective review. *Environmental Sci Technol*, 13, pp 413-423.

KOHLER, D., (1991), Espaces sous hautes surveillance dans la Ruhr, Etudes foncières n°52, pp40-46.

LECA, D., (1990). Caractérisation des altérations du granit d'auriat (creuse) étude de son espace poreux. Thèse Ecole des Mines de Paris (CGI), 190 pages.

LEE, J.-S., (1990), Etude de la pyrolyse basse température de charbons bitumineux et du craquage catalytique simultané des matières volatiles dégagées par la pyrolyse. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine. Université de Nancy.

LEPAGE JESSUA, C., (1993). Les aspects préventifs du droit des sous-sols et les aspects prospectifs du droit de la responsabilité (le rôle des études d'impact et des audits d'environnement et les nouveaux aspects du droit de la responsabilité). Environnement et géotechnique, Paris, 113-143. Presses des Ponts et Chaussées.

LEPAGE JESSUA, C., (1994) "Réhabilitation des sols pollués, perspectives d'évolution", Colloque Pollutec, 21 Octobre 1994 LYON.

LINDSEY, A., (Director Office of Environmental Engineering and technology Development, US Environmental Protection Agency (EPA), "Solving environmental problems worldline", Colloque Pollutec, 21 Octobre 1994 LYON.

LOEHR, R.-C., (1993), Bioremediation of soils, Geotechnical Practice for waste Disposal, 521-549, Chapman & Hall, Londres.

LUTHY, R. -G, DZOMBAK, D. -A., PETERS, C.-A., & AI (1994), Remediating tar-contaminated soils at manufactured gas plant sites, Environmental Sci Technol, Vol.28, n°6, 266-276. American Chemical Society.

LUTHY, R. -G., RAMASWAMI, A., GHOSHAL, S., MERKEL, W., (1993). Interfacial films in coal tar nonaqueous phase liquid-water systems. Environmental Sci Technol, Vol 27, 2914-2918. American Chemical Society.

MACKAY, D.-M., CHERRY, J.A., (1989) Groundwater contamination : Pump and treat remediation, Environmental Sci. Technol., Vol. 23, n°6, pp 630-636. American Chemical Society.

MARTENS, D-A., FRANKENBERGER W-T Jr., (1995). Enhanced degradation of polycyclic aromatic hydrocarbons in soil treated with an advanced oxidative process-Fenton's reagent. Journal of soil contamination, Vol 4/n°2, pp 175-190.

MAUPOIL, H., (1995). Sites d'anciennes usines à gaz, guide technique, Gaz De France, Rapport interne, DR-CERSTA-GDF.

NGUYEN, H-P., (1994). Cas types de pollution des sites d'anciennes usines à gaz. Rapport interne, GDF-DR-CERSTA, 24 pages.

PARKER, B.-L., GILLHAM, W., CHERRY, J.-A., (1994), Diffusive Disappearance of immiscible-phase organic liquids in fractured geologic media. Groundwater, Vol. 32, n°5, 805-819, Sept-Oct 1994.

POWERS, S, -E., LOUBEIRO, C, -O., ABRIOLA L, M., WEBER, J Jr., (1991). Theoretical study of the significance of nonequilibrium dissolution of nonaqueous phase liquids in subsurface systems. Water research vol 27 n°4, 463-477.

PYKA, W., (1993). Aqueous solubility of coal tar constituents under equilibrium conditions. Contaminated Soil'93. 549-555. F.Arendt-M Hinselveld and WJ Van der Brink (eds), Kluwer Academic Publishers.

RASOLOFONIAINIA, J., D., (1987). Transfert d'hydrocarbures solubles dans l'eau en milieux poreux saturé; influence du milieu situé en aval d'un corps d'imprégnation sur la contamination des eaux souterraines. Thèse de l'Institut de Mécanique des Fluides, Université Louis Pasteur Strasbourg, 162p. Réf 3285.

REMOND-GOUILLOUD, M., (1992). Une tempête transatlantique : le problème juridique des terres contaminées. Etudes foncières n°55, Juin 1992.

RISLER, J.-J., (1993). Le confinement, ou "la mise en tombeau étanche", une technique adaptée à la neutralisation des dépôts de déchets industriels. Techniques Sciences Méthodes, 441-445.

ROSTER, M., (1991), Liability for contaminated land in the United Kingdom, rapport intervenants au colloque Copernicus, Anger 5-8 novembre 91.

RYAN, R, -G., DHIR V, K., (1993), The effect of soil-particle size on hydrocarbon entrapment near a dynamic water table. Journal of Soil Contamination, 2(1): 59-92.

SCHWILLE, F. (1988). Dense chlorinated solvents in porous and fractured media. Translated by J.F PANKOW. Lewis, Chelsea Eds Michigan.

TIEHM, A., (1994). Degradation of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the presence of Synthetic Surfactants. Applied and Environmental Microbiology, Vol 60, N°1, p258-263.

ZILLIOX, L., MUNTZER, P., (1971). Etude sur modèles physiques du mécanisme de la pollution des eaux souterraines par des liquides miscibles (saumures) et non miscibles (hydrocarbures). La Houille Blanche n°8 - 1971.

ZILLIOX, L., (1968), Pollution des nappes d'eau souterraine par infiltration de pétrole brut. Etude de l'évolution dynamique et mise au point d'un dispositif de protection. Bulletin du B.R.G.M (deuxième série) Section III, n°4, pp 9-44.

AUTRES OUVRAGES CONSULTÉS :

ANTOINE, G., PELLET, P., ROCHE, E., CUISSON, J., MODOLO, R., EBERENTZ, P., BEGUIN, D., (1993). Sinistre de Chavanay (42), les grandes étapes de la décontamination. Techniques Sciences Méthodes n°9, 429-439.

ANDRIES, D., (1994). Evaluation des risques de migration d'hydrocarbures dans les sols et les aquifères sur les sites d'anciennes usines à gaz. Rapport de stage. GDF-DR-CERSTA-Groupe Environnement / Ecole des Mines de Paris, 54p.

ANTOINE, G., ROBERT, P., IUND, O., EBERENTZ, P., (1993). Sinistre ferroviaire de La Voulte (07) du 13 Janvier 1993, mise en oeuvre immédiate des opérations de dépollution. Techniques Sciences Méthodes n°9, 421-426.

BENSON, R.-C., (1993), Geophysical techniques for subsurface site characterisation, Geotechnical Practice for waste Disposal, 311-357, Chapman & Hall, Londre.

BERGUE, J., -M., MERIENNE, D., (1986). La pollution des sols par les hydrocarbures. Bulletin de liaison des Ponts et Chaussées n°146, Novembre-Décembre 1986, Réf 3141.

BESANÇON, P., CHASTANG, J., LAFAYE, A., (1988). Amélioration de la résolution des histogrammes granulométriques par dédoublement optimal des classes. Bulletin de liaisons des Ponts et Chaussées n° 156 Juillet Août 88, Réf 3386.

BESANÇON, P., CHASTANG, J., LAFAYE, A., (1988). Conversion dimensionnelle des distributions granulaires. Bulletin de liaison des Ponts et Chaussées n°156, (Juillet Août 88).

BOCARD, C., (1994), Pollution des sols par des hydrocarbures. Journées ASTRE. 16 et 17 mai. Institut Français du Pétrole.

CAMBRIDGE, M., COULTON, R., H., (1992), Contaminated land, a nation wide problem, Proceedings of second international conference on construction on polluted and marginal land, 26-28. Engineering technics press.

COLSON, J.,-P., (1992). La responsabilité du fait des déchets en droit public français. Revue Internationale de Droit comparé, n°1

CÔME, B., ALLEMAND-BARRES, A., RICOUR, J., MARTIN, S., (1993). Applications comparatives de méthodes d'évaluation de "risques" liés aux sites pollués : premiers enseignements et perspectives. Techniques Sciences Méthodes, 447-451.

COMMISSION OF THE EUROPEAN COMMUNITIES (Directorate General), (1992), updating of data concerning the impact on the aquatic environment of certain dangerous substances, Part 1 : Benzene, ethylbenzene and isopropylbenzene. Study Contract B6612-90-006688, DG XI/A/3. BKH Consulting engineers.

COPIGNEAUX, F., (1994), Reflexions sur les principes de détermination de critères de décisions pour l'études de sites et de sols potentiellement pollués. Note du Ministère de l'Environnement réf: DPPR, SEI,BPSIED, FC n° 94 III-7, Paris.

DAY, R. S., ASCE A, M., DANIEL D, E., (1985). Hydraulic conductivity of two prototype clay liners. Journal of Geotechnical Engineering, Vol 111, 8, 957-969.

DE MARSILLY, G., (1981). Hydrologie quantitative. Masson éd, coll Scineces de la Terre, 215p.

DEGREMONT (1989), Memento technique de l'eau , Tome 1, 592p- Lavoisier- Paris.

DEMANZE, C., (1993). Analyse en laboratoire des sols contaminés. Environnement et géotechnique, Paris, 171-175. Presses des Ponts et Chaussées.

DEMANZE, C., SPIERENBURG, A., (1995). Les nappes d'eau souterraines au coeur des sols pollués. Environnement et Technique / Info Déchet n°146-p69-82.

Direction de la Recherche, Gaz De France, (1995). Valorisation et réhabilitation des sites d'anciennes usines à gaz, Guide méthodologique. 40p.

DOBIAS, P., Modélisation des hydrocarbures en milieux poreux, validation du modèle par l'expérience. Rapport de stage, Institut français du Pétrole / Ecole des Mines de Paris (Juin 1993) 93p.

EDIL, T., B., (1993). Sealing of boreholes and wells to protect groundwater. Environnement et Géotechnique, Paris, 185-192. Presses des Ponts et Chaussées.

ELEKTOROWICZ, M., YONG, R.N. (1993). Retardation of bioremediation of hydrocarbon contaminated sites. Environnement et géotechnique, Paris, 373-380. Presse des Ponts et Chaussées.

FENNER, T., J., VENDI, M., A., (1992), Ground penetrating radar for hazardous waste site investigations. Polluted and marginal land 92. Engineering technics press.

GALVEZ-CLOUTIER, R., YONG, R., N., MOURATO, D., MULLIGAN, C., (1993). L'utilisation du laboratoire pour l'étude, l'évaluation et le design de projets de réhabilitation des sols contaminés : le cas du port de Toronto, Canada. Environnement et Géotechnique, Paris, 389-395. Presses des Ponts et Chaussées.

GENSKE, D., D., KLAPPERICH, H., NOLL, P., THAMM, B., (1993). Rehabilitation of a polluted and damaged site in coal mining district of germany using geosynthetics. Environnement et Géotechnique, Paris, 397-404. Presses des Ponts et Chaussées.

GOUBIER, R., (1992), Sites contaminés - les étapes de la réhabilitation. Actes du colloque du 14 et 15 Janvier 1992 organisé par le forum du droit des affaires, Gerling Consulting France et la revue préventique.

GOUBIER, R., (1993), La réhabilitation des sols contaminés. Ingénieur de la vie n°429, 55-57.

GRENETIER, I., (1993). Pollution d'une nappe phréatique par des hydrocarbures à Feysin (Rhône). Ecole des Mines de Paris, Centre d'informatique géologique. (travail de l'option Géologie, 3° année).

GROENENDIJK, E., EVERS, G., BOVENDEUR, J., (1993). A more efficient approach to contaminated site clean-up by integrated project design and remedial action. A case study. Environnement et Géotechnique, Paris, 405-412. Presses des Ponts et Chaussées.

GUITON, M., (1993). Description de l'expérience de la station d'épuration écologique d'Oppède (Vaucluse) et extension du procédé. Techniques naturelles et décontamination par l'eau et le sol, intégrées à l'environnement, avec la protection des nappes phréatiques. Environnement et Géotechnique, Paris, 413-421. Presses des Ponts et Chaussées.

HARROP-WILLIAMS, K., ASCE, M., (1985). Clay Liner Permeability : Evaluation and Variation. Journal of Geotechnical Engineering, Vol 111, N°10.

HOLM, L., -A., (1993), Strategies for remediation, Geotechnical Practice for waste Disposal, 290-309, Chapman & Hall, Londres.

HUGLO, C., (1993). Les problèmes et résolutions relatifs, en droit français, aux transferts de responsabilités dans le domaine de la contamination des sols. Environnement et géotechnique, Paris, 3-15. Presse des Ponts et Chaussées.

INDRARATNA, B., GASSON, I., CHOWDHURY, R. N., (1994), Utilization of compacted coal tailings as structural fill. Canadian Geotechnical Journal, Vol 31, 614-623.

KENNEDY, T. C., LAU, D., OFOEGBU, G. I., (1984), Permeability of compacted granular materials. Canadian Geotechnical Journal, Vol 21, 726-729.

LAGNEAU, C., (1993), Analyses de deux goudrons de houille par différentes méthodes préparatives et analytiques. Direction des Etudes et Techniques Nouvelles. Gaz de France. 20p.

LAMBERT, S., (1994). Manuel environnement à l'usage des industriels. Afnor. 390p.

LAHA, S., LIU, Z., EDWARDS, D., LUTHY, R. -G., (1992). The Potential for solubilizing Agents to Enhance the Remediation of Hydrophobic Organic Solutes in Soil-Water Suspensions. Master of Civil Engineering, CMU DOE/PC/90303-T1, DE92 011416.

LE DAMANY, S., (1993). La problématique de l'assurance des risques environnementaux. Environnement et géotechnique, Paris, 17-32. Environnement et géotechnique, Paris. Presse des Ponts et Chaussées.

LECBYCHOVA, R., (1993). The basic factors directing the behaviour of contaminants in soils. Environnement et Géotechnique, Paris, 235-242. Presses des Ponts et Chaussées.

LEE PEYTON, R., SCHROEDER, P. R., (1993), Water balance for landfills, Geotechnical Practice for waste Disposal, 215-221, Chapman & Hall, Londres.

LITTMANN-MARTIN, M. J., (1992). Le droit pénal des déchets en France. Revue internationale du Droit comparé, n°1.

MACDONALD, J.-A., HAVANAUGH, M.-C. (1994), Restoring contaminated groundwater: an achievable goal?, Environmental Sci Technol, Vol.28, n°8, 362A-368A. American Chemical Society.

MACDONALD, J.-A., RITTMANN B.-E., (1993), Performance standards for in situ bioremediation. Enviro. Sci. Technol. Vol. 27 n°10.

MAES, M., (1992), Options déchets, 621p. Johannet, Paris.

MALANDIN, G., MILLET, G., (1990), Rapport de la commission d'enquête sur la pollution de l'eau et la politique nationale d'aménagement des ressources hydrauliques, dépôt au JO du 24.11.90. Presse de l'Assemblée Nationale n° 1762, 387p.

MALANDIN, G., (1990), Rapport d'information sur la gestion de l'eau, n° 1460-175p. Presse de l'Assemblée Nationale.

MALLARD, E., G., BAEDECKER, M.-J., ESSAID H.-I., EGANHOUSE, R., (1993), Hydrocarbon and degradation in ground water, 18-20, Geotimes, décembre.

MARCOTTE, M., BEHAXETEGUY, J., -P., (1993). Restauration d'un important site industriel au Canada. Environnement et Géotechnique, Paris 439-446. Presses des Ponts et Chaussées.

MARTIN, G., J., (1992). La responsabilité civile du fait des déchets en droit français. Revue internationale de Droit comparé, n°1.

MARTINS, U., P., BARNOUD, F., (1993). Assesment of the risks potentials and remediation aims of contaminated site. Environnement et Géotechnique, Paris, 447-448. Presses des Ponts et Chaussées.

MESCHEDE, T., GÜNTHER, K., (1990). Liquid removal from abandoned waste sites and contaminated soils, planing and dimensioning of removal systems. F.Arendt-M Hinselveld and WJ Van der Brink (eds), Contaminated soil' 90, 1105-1112.

MEYER, J., -M., (1994), Le Guide du tout environnement, Paris, 53-71, L'Usine Nouvelle, n°2474, 13 Octobre1994.

Ministère de l'Environnement, (1989), Les anciens dépôts de déchets industriels, 46p.

Ministère de l'Environnement, Inventaire 1994 des sites et sols pollués connus, mode d'emploi du formulaire de recensement.8p. Paris

Ministère de l'Environnement, note : Elaboration d'un guide pour l'étude des sols, reconnaissance préliminaire des sites potentiellement pollués.Réf : CTP 94-29, 11 mars 1994, 10p, Paris.

Ministère de l'Environnement, Projet de méthode d'évaluation simplifiée des risques et de hiérarchisation des sites pollués. Projet de volet relatif aux risques pour les eaux souterraines. réf : DEPR, SEI, FC-AB 94-IV-8 du 18.04.1994. Paris.

NOWICKI, V., K., (1993). Bioremédiation in-situ de sols contaminés, buts, stratégie et coûts. Ecosystem Engineering SA Geobac Technologie Group Incorporation Wepion Canada.

ONG, S., K., HINCHEE, R., E., (1993). Application of the in situ respiration test and bioventing for the remediation of hydrocarbon-contaminated soils : biodegradation rates comparaison. Environnement et Géotechnique, Paris, 449-453. Presses des Ponts et Chaussées.

PELLET, M., LECOMTE, P., CAROOZO, Ch., PAIRET, G., (1993). La réhabilitation par voies biologiques de sites contaminés par des PCB. Techniques Sciences Méthodes, 453-458.

PENNELL, K, D., ABRIOLA, L, M., WEBER, W, J., Jr. (1993). Surfactant-Enhanced solubilization of residual Dodecane in soil columns. Experimental investigation. Environmental Sciences Technology, vol 27, 2332-2340.

PERRODIN, Y., GOURDON, R., (1994), Faisabilité de la réhabilitation des sites contaminés - des essais de laboratoire à l'opération industrielle. Communication ECOTOP94- Conférence 311. Le traitement des anciens sites industriels pollués.

PERRODIN, Y., GOURDON, R., & BAUCHARD, J, -M., (1993), diagnostic et expertises des sites contaminés. Quelles analyses pour quelles conclusions ? Environnement et Techniques (Info Déchets), Sept 93, 129, 49-57.

PETERS C, A., LUTHY, R. G., (1994), Semiempirical Thermodynamic Modeling of Liquid-liquid Phase Equilibria : Coal Tar Dissolution in Water-Miscible Solvents. Environmental Science and Technology, Vol 28, N°7, 1331-1340.

Rapport de l'Académie des Sciences (Novembre 1991) N°29. Pollution des nappes d'eau souterraines en France. Edition du BRGM ISBN 2-909344-00-2. (côte EMP C 150-A).

RAMANANTSOA, B., MUNTZER, P., ZILLIOX, L., (1986), Dissolution sélective d'un mélange d'hydrocarbures par l'eau en milieux poreux saturé. Application à la pollution des eaux souterraines par les produits pétroliers. Revue des sciences de l'eau, 5, 149-168.

RE.CO.R.D., (1994) ; contrat N°93-503, Investigation sur les différentes approches de la définition et de la qualification des sites et sols pollués. 600p

RAZAKARISOA, O., (1990). Dissolution et rétention sélective d'hydrocarbures en milieu poreux saturé. Impact de l'air résiduel et rôle du matériau solide, lors de leur propagation. Thèse de l'Université Louis Pasteur de Strasbourg. 146p.

REYNOLDS, J., M., McCANN, D., M., (1992), The geophysical methods for the assesment of landfill and waste disposal sites. Proceedings of second international conference on construction on polluted and marginal land 92. 63-71.

ROKOSCH, W., D., (1990), A balanced remedial dredging programme. Contaminated Soil'90. F Arendt & al, Kluwer Academic Publishers. ISBN 0-7923-1058-6.

ROSENBLATT DAVID, H., MANNING, J. Jr et Al, (1994), Evaluation of Health risks from a buried mass of diesel fuel before and after bioremediation. Journal of Soil contamination Vol 3-1, 1-27. Lewis publishers.

SCHLEGEL, Th., (1993). Conception et réalisation de travaux de dépollution de sites contaminés. Environnement et Géotechnique, Paris, 465-472. Presses des Ponts et Chaussées.

SHACKELFORD, C.-D., (1993), Contaminant transport, Geotechnical Practice for waste Disposal, 34-65, Chapman & Hall, Londre.

SMITH, D., W., BOOKER, J., R., (1993). Decontamination of soil : interception-sorption trench. Environnement et géotechnique, Paris, 473-480. Presse des Ponts et Chaussées.

STROH, D., NIEMEYER, T., VIEDT, H., (1990). Experience in microbiological soil remediation. F.Arendt-M Hinselveld and WJ Van der Brink (eds), Contaminated soil' 90, 947-958, ISBN 0-7923-1058-6.

SUAIS, M-F., WAFELMAN, C., (1993). Ancienne usine à gaz de Lyon-Perrache (France). Diagnostic et traitement préliminaire en vue de la réutilisation d'un site aujourd'hui en zone urbaine. Tecniques Sciences Méthodes, 411-418.

SUCH, C., BOCARD, C., QUINQUIS, J., -J., (1988). Un prototype de lavage des sables pour la restauration des plages polluées par des hydrocarbures. Bulletin de liaison des Ponts et Chaussées n°156, Juillet Août 1988. Réf 3330.

- TAVENAS, F., JEAN, P., LEBLOND, P., LEROUUEIL, S.,** (1983), The permeability of natural soft clays, part 1 : Methods of laboratory measurement. Canadian Geotechnical Journal 20, 629-644.
- TAVENAS, F., JEAN, P., LEBLOND, P., LEROUUEIL, S.,** (1983), The permeability of natural soft clays, part 2: permeability characteristics. Canadian Geotechnical Journal 20, 645-660.
- TELLIARD, W.-A.,** (1992), EPA's Environmental monitoring methods index, Linking Environmentally significant analytes, methods, and lists. Environ, Sci, Techno, Vol.27, n°1, 1993, 39-41. American Chemical Society.
- VAN DAM, J.,** (1969). La migration des hydrocarbures dans une nappe aquifère. L'Eau, 531-541. Paris.
- VIOLAS, D.,** (1993). Ecrans étanches verticaux : un procédé innovant. Environnement et Géotechnique, Paris, 481-487. Presses des Ponts et Chaussées
- WAFELMAN, C.,** (1993). Sites d'anciennes usines à gaz, politique actuelle de Gaz De France, Rapport interne, DETN-GDF. 100p.
- WELSH, R.-J., HULL, C.-G., et Al,** (1993), Estimation of the migration potential of diesel fuel, constituents from soil to ground water : a case study. Journal of soil contamination Vol 2(4), 343-359. Lewis Publishers.
- ZIEGLER, M., BALTHAUS H.,** (1990). Decontamination of a former gaz works site with an in situ high pressure soil washing technique. F Arendt M Hinselveld and WJ Van der Brink (eds), Contaminated soil' 90, 921-927, ISBN 0-7923-1058-6.

ANNEXES

- Mode opératoire utilisé lors de la caractérisation.
- Résultats des granulométries effectuées avant et après traitement à 300°C et 500°C.
- Résultats des essais de perméabilité.
- Liste des principaux composés détectés en CPG-SM.
Eléments présents dans le sol S3 autres que les 16 HAP.
- Seuils de détection du laboratoire prestataire.

MODE OPERATOIRE DE LA GRANULOMETRIE REALISEE PAR TAMISAGE PAR VOIE HUMIDE

Appareillage utilisé :

1- Balance :

Une balance au 1/10° de gramme près.

2- Tamis :

La série de tamis AFNOR emboîtables à mailles carrées et un fond de tamis à sortie latérale.

3- Vibro-tamis.

Un vibro tamis à vibrations verticales.

4- Tuyau d'arrivée d'eau :

Un tuyau d'arrivée d'eau équipé d'un manomètre indicateur de pression à 150 mbar et muni d'un robinet.

5- Dispositif d'arrosage :

Un dispositif d'arrosage (pomme de douche) placé au bout du tuyau d'arrivée d'eau de manière à répartir plus uniformément l'eau nécessaire à la réalisation de l'essai.

6- Seaux :

Au minimum, un seau par tamis (contenance minimale de 10 litres) et si possible deux ou trois récipients en réserve.

7- Pelle :

Une pelle pour effectuer la prise d'échantillon.

8- Béchers :

Un bécher de 5 litres.

Au minimum 2 béchers de 1 litre par classe granulométrique.

9- Spatule :

Une spatule avec un embout souple en plastique.

10- Etuve :

Une enceinte thermique ou étuve de dessiccation, à température réglée à 105°C, à circulation d'air.

11- Un échantillonneur.

Exécution de l'essai

Le poids P de matériau humide représentatif retenu pour l'essai, est au minimum de : $P(\text{en Kg}) = 2.D(\text{en cm})$, avec D la taille des plus gros éléments.

Le tamisage est effectué sur une colonne de 10 tamis emboîtables montés les uns sur les autres sur un vibrotamis à vibrations verticales avec fond de tamis à sortie latérale.

On choisit les dix tamis apparemment les plus adaptés à la granularité du matériau, en les répartissant le plus régulièrement possible en fonction de "log d", et en les rapprochant dans les tailles apparemment les plus représentées.

En dessous de la sortie latérale du fond de tamis, on dispose un récipient destiné à recevoir la suspension de fines inférieures à 0.04mm.

1. Si l'échantillon retenu pour l'essai est supérieur à 2kg, le partager en lots de 2kg environ.
2. Mélanger le premier lot de 2 kg avec 1 litre d'eau dans un bêcher en plastique de 5 litres.
3. Disperser le contenu du bêcher de 5 litres (échantillon + eau) par un mouvement circulaire du bêcher sans toucher au matériau.
4. Mettre en place la colonne de 10 tamis et la serrer, puis mettre en route la vibration.
5. Verser le contenu du bêcher au dessus du tamis supérieur de la colonne; le contenu le plus liquide (eau + fines) est ainsi vidé sur le tamis supérieur.
6. Régler le débit d'eau pour éviter toute éclaboussure.
7. A l'aide du jet, remettre le reste du matériau en suspension et le vider sur le tamis supérieur.
8. Rincer ensuite le bêcher toujours au dessus de la colonne pour décoller la pellicule éventuelle de matériau adhérent avec les parois du bêcher.
9. Reprendre l'arrosage du tamis supérieur.
10. Disperser le contenu du tamis supérieur à l'aide de la spatule souple, sous arrosage en prenant soin de ne pas écraser les agrégats.
11. Arrêter l'arrosage.
12. Démonter le premier tamis.
13. Effectuer un rinçage à l'eau à l'aide d'une pissette du dessous de ce premier tamis maintenu au dessus de la colonne, afin de récupérer le matériau éventuellement collé.
14. Placer ce premier tamis et son contenu dans un seau.
15. Marquer sur le seau la classe granulométrique correspondante.
16. Serrer la colonne des tamis restants et recommencer les opérations 9 à 15 pour le tamis suivant.
17. Recommencer l'opération 16 jusqu'à recueillir les refus lavés de tous les tamis.
18. Recommencer les opérations 1 à 17 pour les lots de 2 kg suivants, en ajoutant dans le même seau, les refus contenus sur un même tamis à partir des différents lots.

19. Pour le dernier lot, dans chaque seau, vider le contenu du tamis correspondant et rincer celui-ci soigneusement.
20. Laisser à décanter pendant 48 heures le matériau recueilli dans les seaux.
21. Dans chaque seau, siphonner au maximum l'eau surnageante en prenant soin de ne pas entraîner de particules fines.
22. Transférer le contenu non siphonné de chaque seau dans un bécher préalablement taré et référencé, en prenant soin de bien récupérer tous les éléments à l'aide d'une pissette d'eau.
23. Sécher les béchers à 60°C.
24. En déduire le poids des différentes fractions granulométriques.
25. Stocker chaque fraction granulométrique dans une poche en plastique référencée.

Remarque : la dispersion à la spatule s'effectue jusqu'à la classe granulométrique 1mm. Pour les éléments inférieurs à 1 mm, le jet d'eau reste suffisant pour l'opération.

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES
AVANT ET APRES LES CALCINATIONS
A 300°C et 500°C
POUR LES DIFFERENTS ECHANTILLONS
DE SOLS TESTES**

matériau pollué calciné à 300°C et tamisé à sec

STAP 300°C 18h classe	Poids des sous fractions granulométriques obtenues par tamisage à sec des fractions granulométriques de brut calcinées 18h à 300°C											Total lignes	Poids pollué sec initial	PF 300°C-18h moyenne
	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04			
20-40	0	0	0	-	-	-	-	-	-	-	-	0	0.00	3.22
10-20		198.56	11.487	18.985	12.356	65.32	1.2	2.36	3.65	2	0.336	316.264	337.28	6.23
5-10			68.36	36.156	9.878	35.3254	2.32	19.648	25.325	4.6598	2.3	203.9702	215.68	5.43
2.5-5				41.3265	3.3698	6.3258	0.3584	2.32	2.365	0.47	0.25	56.7855	60.10	5.52
1.25-2.5					65	5.328	2.65	14.5698	1.16	0.18	2.2365	91.1043	95.50	4.6
0.63-1.25						43.21	6.18	11.987	2.41	0.045	64.542	68.01	68.01	5.1
0.315-0.63							24	16.598	2.87	0.0025	0.354	43.8245	44.75	2.06
0.16-0.315								29.2	4.85	0.85	0.4325	35.3325	35.77	1.23
0.08-0.16									22.3697	2.47	1.2	26.0397	29.65	12.19
0.04-0.08										10.325	5.04	15.365	17.02	9.74
<0.04											20.21	20.21	23.56	14.21
Total colonne	0	198.56	79.847	96.4775	90.6018	155.5092	36.7084	96.6878	64.9997	21.6473	32.404			

STAP 300°C - 18h poids en grammes des sous fractions granulométriques récupérées à l'issue du tamisage à sec des fractions granulométriques de stap calciné recalculées pour 100g														Poids initial pour 100g de brut sec %	% PF 300°C-18h
Classes	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes	PF 300-18h %		
20-40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.00	0.00	3.22
10-20		1.90	0.01	0.24	0.15	0.81	0.01	0.03	0.05	0.02	0.00	3.23	0.26	4.19	6.23
5-10			0.04	0.39	0.11	0.38	0.03	0.21	0.28	0.05	0.03	1.52	0.13	2.35	5.43
2.5-5				3.17	0.26	0.49	0.03	0.18	0.18	0.04	0.02	4.36	0.25	4.62	5.52
1.25-2.5					4.09	0.34	0.17	0.92	0.07	0.01	0.14	5.74	0.28	6.01	4.6
0.63-1.25						4.84	0.69	1.34	0.27	0.08	0.01	7.23	0.39	7.62	5.1
0.315-0.63							21.67	14.98	2.59	0.00	0.32	39.56	0.83	40.39	2.06
0.16-0.315								17.82	2.96	0.52	0.26	21.56	0.27	21.83	1.23
0.08-0.16									3.05	0.34	0.16	3.55	0.49	4.04	12.19
0.04-0.08										1.80	0.88	2.67	0.29	2.96	9.74
<0.04											5.13	5.13	0.85	5.99	14.21
Total colonne	0.00	1.90	0.05	3.80	4.61	6.86	22.59	35.48	9.44	2.86	6.95	94.56	4.04	100	
Gran 300	0.00	1.98	0.05	3.96	4.81	7.15	23.54	36.97	9.84	2.98	7.25	98.54			

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES AVANT ET
APRES CALCINATION 300°C - 18 heures SOL SI**

matériau pollué calciné à 500°C et tamisé à sec

STAP 500°C 18h	Poids des sous fractions granulométriques obtenues par tamisage à sec des fractions granulométriques de brut calcinées 18h à 500°C										Total lignes	Poids pollué sec initial	PF 500°C-18h moyenne
classe	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	0	0.00
20-40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10-20	-	213.7	62.8	0.21	0.92	1.06	8.16	22.52	12.51	5.59	1.35	328.82	376.53
5-10	-	-	117	5.9	2.75	1.96	9.8	26.87	13.09	6.35	2.36	186.08	250.14
2.5-5	-	-	-	53	4.43	0.67	2.81	7.21	4.06	2.5	0.65	75.33	103.12
1.25-2.5	-	-	-	-	8.79	2.87	2.49	4.8	2.24	1.55	0.59	23.33	34.74
0.63-1.25	-	-	-	-	-	4.77	11.76	19.58	6.35	1.57	0.57	44.6	52.18
0.315-0.63	-	-	-	-	-	-	18.88	27.05	6.73	1.33	0.79	54.78	58.81
0.16-0.315	-	-	-	-	-	-	-	50.94	11.79	1.33	0.97	65.03	68.19
0.08-0.16	-	-	-	-	-	-	-	-	32.9	5.81	2.85	41.56	48.91
0.04-0.08	-	-	-	-	-	-	-	-	-	23.7	9.47	33.17	41.16
<0.04	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	22.72	22.72	19.42
Total colonne	0	213.7	179.8	59.11	16.89	11.33	53.9	158.97	89.67	49.73	42.32	28.40	20

STAP 500°C - 18h poids en grammes des sous fractions granulométriques récupérées à l'issue du tamisage à sec des fractions granulométriques de stap calciné recalculées pour 100g													Poids initial pour 100g de brut sec %	% PF 500°C-18h
Classes	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes	PF 500-18h %	
20-40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.00	-
10-20	-	2.38	0.70	0.00	0.01	0.01	0.09	0.25	0.14	0.06	0.02	3.66	0.53	4.19
5-10	-	-	1.10	0.06	0.03	0.02	0.09	0.25	0.12	0.06	0.02	1.75	0.60	2.35
2.5-5	-	-	-	2.37	0.20	0.03	0.13	0.32	0.18	0.11	0.03	3.37	1.24	4.62
1.25-2.5	-	-	-	-	1.52	0.50	0.43	0.83	0.39	0.27	0.10	4.04	1.98	6.01
0.63-1.25	-	-	-	-	-	0.70	1.72	2.86	0.93	0.23	0.08	6.51	1.11	7.62
0.315-0.63	-	-	-	-	-	-	12.97	18.58	4.62	0.91	0.54	37.62	2.77	40.39
0.16-0.315	-	-	-	-	-	-	-	16.30	3.77	0.43	0.31	20.81	1.01	21.83
0.08-0.16	-	-	-	-	-	-	-	-	2.72	0.48	0.24	3.43	0.61	4.04
0.04-0.08	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.71	0.68	2.39	0.58	2.96
<0.04	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	4.79	4.79	1.20	5.99
Total colonne	0.00	2.38	1.80	2.43	1.76	1.25	15.42	39.40	12.87	4.26	6.81	88.38	11.62	100
Gran 500	0.00	2.69	2.03	2.75	1.99	1.42	17.45	44.58	14.57	4.82	7.71	100.00		

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES AVANT ET
APRES CALCINATION 500°C - 18 heures SOL S1**

matériau pollué calciné à 300°C et tamisé à sec

classe	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes	Poids pollué sec initial	PF 300°C-1 moyenne
20-40	43.8	0	0.09	0	0.02	0.04	0.03	0.05	0.02	0	0	44.05	45.52	3.22
10-20		42.1	11.35	2.3	2.92	0.78	0.27	0.32	0.02	0.03	0	60.09	64.08	6.23
5-10			29.04	0.5	0.06	0.06	0	0.09	0.01	0	0	29.76	31.47	5.43
2.5-5				19.65	9.98	0.78	0.36	0.42	0.09	0.08	0.08	31.44	33.28	5.52
1.25-2.5					19.69	9.43	3.47	1.76	0.28	0.14	0.22	34.99	36.68	4.6
0.63-1.25						22.19	12.98	8.25	0.73	0.19	0.24	44.58	46.98	5.1
0.315-0.63							34.61	20.75	1.52	0.39	0.46	57.73	58.94	2.06
0.16-0.315								51.30	3.38	0.56	0.30	55.54	56.23	1.23
0.08-0.16									29.84	4.29	3.09	37.22	42.39	12.19
0.04-0.08										27.97	10.7	38.67	42.84	9.74
<0.04											24.63	24.63	28.71	14.21
Total colonne	43.8	42.1	40.48	22.45	32.67	33.28	51.72	82.94	35.89	33.65	39.72			

Classes	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes	PF 300-18h %	Poids initial pour 100g de brut sec %	% PF 300°C-18h
20-40	2.40	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	2.42	0.08	2.50	3.22
10-20		2.18	0.59	0.12	0.15	0.04	0.01	0.02	0.00	0.00	0.00	3.11	0.21	3.31	6.23
5-10			6.72	0.12	0.01	0.01	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	6.89	0.40	7.29	5.43
2.5-5				2.81	1.43	0.11	0.05	0.06	0.01	0.01	0.01	4.50	0.26	4.76	5.52
1.25-2.5					3.71	1.78	0.65	0.33	0.05	0.03	0.04	6.60	0.32	6.92	4.6
0.63-1.25						4.86	2.84	1.81	0.16	0.04	0.05	9.77	0.52	10.29	5.1
0.315-0.63							12.96	7.77	0.57	0.15	0.17	21.61	0.45	22.06	2.06
0.16-0.315								16.91	1.11	0.18	0.10	18.31	0.23	18.53	1.23
0.08-0.16									3.69	0.53	0.38	4.61	0.64	5.25	12.19
0.04-0.08										3.62	1.38	5.01	0.54	5.55	9.74
<0.04											11.61	11.61	1.92	13.53	14.21
Total colonne	2.40	2.18	7.31	3.05	5.31	6.81	16.52	26.92	5.61	4.56	13.76	94.43	5.57	100	
Gran 300	2.55	2.31	7.75	3.23	5.62	7.21	17.50	28.50	5.94	4.83	14.57	100.00			

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES AVANT ET
APRES CALCINATION 300°C - 18 heures SOL S2**

matériau pollué calciné à 500°C et tamisé à sec

STAP 500°C - 18h Poids des sous fractions granulométriques obtenues par tamisage à sec des fractions granulométriques de brut calcinées 18h à 500°C														Total lignes		Poids pollué sec initial		PF 500°C-18h moyenne	
Classe	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04								
20-40	58.77	3.1	5.11	4.2	3.62	2.06	5.99	11.75	1.85	1.39	0.36	98.2		108.97		98.2		108.97	
10-20		26.4	2.9	0.3	0.84	1.01	1.92	5.32	1.43	1.25	0.25	41.62		53.17		41.62		53.17	
5-10			14.16	1.1	0.36	0.26	0.81	2.51	0.71	0.94	0.33	21.18		29.67		21.18		29.67	
2.5-5				11.5	5.99	0.6	1.07	3.21	1.28	1.17	0.58	25.4		37.40		25.4		37.40	
1.25-2.5					10.87	3.48	1.24	2.44	0.94	1.47	0.44	20.88		30.90		20.88		30.90	
0.63-1.25						8.51	10.73	10.61	1.45	1.31	0.62	33.23		41.28		33.23		41.28	
0.315-0.63							21.48	21.18	2.46	1.19	0.82	47.13		52.23		47.13		52.23	
0.16-0.315								49.82	3.81	0.91	0.92	55.46		59.40		55.46		59.40	
0.08-0.16									15.59	8.9	3.74	28.23		38.74		28.23		38.74	
0.04-0.08										22.44	13.61	36.05		43.73		36.05		43.73	
<0.04											19.52	19.52		24.70		19.52		24.70	
total colonne	58.77	29.5	22.17	17.1	21.68	15.92	43.24	106.84	29.52	40.97	41.19								

STAP 500°C - 18h poids en grammes des sous fractions granulométriques récupérées à l'issue du tamisage à sec des fractions granulométriques de stap calciné recalculées pour 100g															Poids initial pour 100g de brut sec %		%
Classes	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes	PF 500-18h %				
20-40	1.35	0.07	0.12	0.10	0.08	0.05	0.14	0.27	0.04	0.03	0.01	2.25	0.25	2.50		9.88	
10-20		1.65	0.18	0.02	0.05	0.06	0.12	0.33	0.09	0.08	0.02	2.59	0.72	3.31		21.72	
5-10			3.48	0.27	0.09	0.06	0.20	0.62	0.17	0.23	0.08	5.20	2.08	7.29		28.61	
2.5-5				1.46	0.76	0.08	0.14	0.41	0.16	0.15	0.07	3.24	1.53	4.76		32.09	
1.25-2.5					2.43	0.78	0.28	0.55	0.21	0.33	0.10	4.68	2.24	6.92		32.42	
0.63-1.25						2.12	2.67	2.64	0.36	0.33	0.15	8.28	2.01	10.29		19.51	
0.315-0.63							9.07	8.95	1.04	0.50	0.35	19.91	2.16	22.06		9.77	
0.16-0.315								15.55	1.19	0.28	0.29	17.31	1.23	18.53		6.63	
0.08-0.16									2.11	1.21	0.51	3.82	1.42	5.25		27.13	
0.04-0.08										2.85	1.73	4.57	0.97	5.55		17.56	
<0.04											10.70	10.70	2.84	13.53		20.98	
Total colonne	1.35	1.72	3.78	1.85	3.42	3.15	12.62	29.31	5.38	5.98	13.99	82.55	17.45	100			
Gran 500	1.63	2.08	4.57	2.24	4.14	3.82	15.29	35.51	6.52	7.25	16.95	100.00					

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES AVANT ET
APRES CALCINATION 500°C - 18 heures SOL S2**

matériau pollué calciné à 300°C et tamisé à sec

STAP 300°C 18h		Poids des sous fractions granulométriques obtenues par tamisage à sec des fractions granulométriques de brut calcinées 18h à 300°C										Total lignes	Poids pollué sec initial	PF 300°C-18h moyenne
classe		20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04		
20-40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0.00	-
10-20	-	1.83	0.62	0.03	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	2.50	4.75
5-10	-	-	31.56	0.49	0.09	0.03	0.03	0.03	0.03	0.02	0.00	0.00	32.24	6.35
2.5-5	-	-	-	17.88	0.45	0.05	0.05	0.05	0.04	0.01	0.00	0.00	18.50	6.90
1.25-2.5	-	-	-	-	13.42	0.68	0.10	0.10	0.02	0.00	0.00	0.03	14.26	6.54
0.63-1.25	-	-	-	-	-	14.90	0.99	0.99	0.03	0.02	0.01	0.02	15.98	6.78
0.315-0.63	-	-	-	-	-	-	28.95	28.95	2.56	0.04	0.02	0.08	32.27	1.92
0.16-0.315	-	-	-	-	-	-	-	28.27	28.27	0.99	0.06	0.04	29.36	1.32
0.08-0.16	-	-	-	-	-	-	-	-	10.74	2.96	1.83	1.83	15.53	7.85
0.04-0.08	-	-	-	-	-	-	-	-	-	6.80	4.00	4.00	10.80	6.14
<0.04	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	2.01	2.01	2.31	12.83
Total colonne	-	1.83	32.18	18.40	13.98	15.67	30.12	30.12	30.96	11.83	9.85	8.01	2.01	12.83

STAP 300°C - 18h poids en grammes des sous fractions granulométriques récupérées à l'issue du tamisage à sec des fractions granulométriques de stap calciné recalculées pour 100g														Poids initial pour 100g de brut sec %	% PF 300°C-18h
Classes	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes	PF 300-18h %		
20-40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10-20	-	0.45	0.15	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.61	0.03	0.64	4.75
5-10	-	-	4.42	0.07	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	4.51	0.31	4.82	6.35
2.5-5	-	-	-	4.57	0.12	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	4.73	0.35	5.08	6.90
1.25-2.5	-	-	-	-	4.60	0.23	0.03	0.01	0.00	0.00	0.01	4.88	0.34	5.22	6.54
0.63-1.25	-	-	-	-	-	7.71	0.51	0.02	0.01	0.00	0.01	8.27	0.60	8.87	6.78
0.315-0.63	-	-	-	-	-	-	20.89	1.85	0.03	0.02	0.06	22.84	0.45	23.29	1.92
0.16-0.315	-	-	-	-	-	-	-	30.50	1.07	0.06	0.04	31.67	0.42	32.09	1.32
0.08-0.16	-	-	-	-	-	-	-	-	2.27	0.63	0.39	3.28	0.28	3.56	7.85
0.04-0.08	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.17	0.69	1.86	0.12	1.98	6.14
<0.04	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	12.59	12.59	1.85	14.44	12.83
Total colonne	-	0.45	4.57	4.64	4.73	7.96	21.46	32.38	3.39	1.88	13.79	95.24	4.76	100.00	
Gran 300	-	0.47	4.79	4.88	4.96	8.36	22.53	34.00	3.55	1.98	14.48	100.00			

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES AVANT ET
APRES CALCINATION 300°C - 18 heures SOL S3**

matériau pollué calciné à 500°C et tamisé à sec

STAP 500°C 18h	Poids des sous fractions granulométriques obtenues par tamisage à sec des fractions granulométriques de brut calcinées 18h à 500°C										Total lignes	Poids pollué sec initial	PF 500°C-18h moyenne
classe	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04		
20-40	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	-	-
10-20		3.18	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	3.18	8.65
5-10			22.38	0.32	0.07	0.03	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	22.86	20.14
2.5-5				11.83	0.16	0.05	0.02	0.00	0.01	0.00	0.00	12.07	32.20
1.25-2.5					8.56	0.36	0.07	0.04	0.04	0.02	0.07	9.15	32.79
0.63-1.25						8.64	0.48	0.08	0.05	0.04	0.21	9.50	26.81
0.315-0.63							20.00	1.80	0.05	0.03	0.32	22.19	12.55
0.16-0.315								27.90	0.77	0.03	0.24	28.94	7.30
0.08-0.16									24.84	7.10	5.69	37.63	24.56
0.04-0.08										16.68	6.99	23.68	21.52
<0.04											5.69	7.34	22.51
Total colonne	0.00	3.18	22.38	12.16	8.79	9.07	20.59	29.84	25.77	23.91	19.21		

STAP 500°C - 18h poids en grammes des sous fractions granulométriques récupérées à l'issue du tamisage à sec des fractions granulométriques de stap calciné recalculées pour 100g

Classes	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes	PF 500-18h %	Poids initial pour 100g de brut sec %	% PF 500°C-18h
20-40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10-20		0.58	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.58	0.06	0.64	8.65
5-10			3.77	0.05	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	3.85	0.97	4.82	20.14
2.5-5				3.37	0.05	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	3.44	1.63	5.08	32.20
1.25-2.5					3.28	0.14	0.03	0.02	0.01	0.01	0.03	3.51	1.71	5.22	32.79
0.63-1.25						5.90	0.33	0.05	0.03	0.03	0.14	6.49	2.38	8.87	26.81
0.315-0.63							18.35	1.65	0.05	0.03	0.29	20.37	2.92	23.29	12.55
0.16-0.315								28.68	0.79	0.03	0.24	29.75	2.34	32.09	7.30
0.08-0.16									1.78	0.51	0.41	2.69	0.88	3.56	24.56
0.04-0.08										1.10	0.46	1.56	0.43	1.98	21.52
<0.04											11.19	11.19	3.25	14.44	22.51
Total colonne	0.00	0.58	3.77	3.43	3.34	6.06	18.72	30.41	2.67	1.70	12.76	83.43	16.57	100.00	
Gran 500	0.00	0.70	4.51	4.11	4.01	7.26	22.44	36.44	3.20	2.04	15.29	100.00			

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES AVANT ET
APRES CALCINATION 500°C - 18 heures SOL S3**

matériau non pollué calciné à 300°C et tamisé à sec

S 4 NP 300°C 18 Poids des sous fractions granulométriques obtenues par tamisage à sec des fractions granulométriques de brut calcinées 18h à 300°C														Poids pollué sec initial		PF 300°C-1 moyenne	
classe	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes		Poids pollué sec initial		PF 300°C-1 moyenne	
20-40	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.00	
10-20		5.2	0.66	0.04	0.02	0	0.01	0	0.02	0	0	0	5.95	0	5.95	5.98	0.44
5-10			3.94	0.4	0.22	0.08	0.2	0.34	0.05	0	0	0	5.23	0	5.23	5.35	2.32
2.5-5				1.3	0.39	0.02	0.04	0.02	0.01	0	0	0	1.78	0	1.82	1.82	2.34
1.25-2.5					8.57	11.09	1.36	1.02	0.16	0.05	0.07	22.32	22.32	0	22.59	22.59	1.2
0.63-1.25						20.37	38.6	11.04	0.3	0.01	0.01	70.33	70.33	0	70.75	70.75	0.6
0.315-0.63							47.48	26.13	0.82	0.01	0.01	74.45	74.45	0	74.88	74.88	0.58
0.16-0.315								75.18	1.16	0.01	0.01	76.36	76.36	0	76.91	76.91	0.71
0.08-0.16									72.82	1.65	0.12	74.59	74.59	0	75.10	75.10	0.68
0.04-0.08										48.17	4.12	52.29	52.29	0	52.90	52.90	1.16
<0.04											36.53	36.53	36.53	0	37.75	37.75	3.23
Total colonne	0	5.2	4.6	1.74	9.2	31.56	87.69	113.73	75.34	49.9	40.87						

S 4 NP 300°C - 18 poids en grammes des sous fractions granulométriques récupérées à l'issue du tamisage à sec des fractions granulométriques de stap calciné recalculées pour 100g														Poids initial pour 100g de brut sec %		% PF 300°C-18h	
Classes	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes		PF 300-18h %		% PF 300°C-18h	
20-40												0.00	0.00	0.00	0.00	0.12	
10-20		0.11	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.13	0.13	0.00	0.13	0.13	0.44
5-10			0.14	0.01	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.18	0.18	0.00	0.19	0.19	2.32
2.5-5				0.05	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.07	0.07	0.00	0.07	0.07	2.34
1.25-2.5					0.23	0.30	0.04	0.03	0.00	0.00	0.00	0.60	0.60	0.01	0.61	0.61	1.2
0.63-1.25						4.00	7.59	2.17	0.06	0.00	0.00	13.82	13.82	0.08	13.91	13.91	0.6
0.315-0.63							24.56	13.52	0.42	0.01	0.01	38.51	38.51	0.22	38.74	38.74	0.58
0.16-0.315								33.58	0.52	0.00	0.00	34.10	34.10	0.24	34.35	34.35	0.71
0.08-0.16									3.34	0.08	0.01	3.42	3.42	0.02	3.44	3.44	0.68
0.04-0.08										2.00	0.17	2.18	2.18	0.03	2.20	2.20	1.16
<0.04											6.06	6.06	6.06	0.20	6.26	6.26	3.23
Total colonne	0.00	0.11	0.15	0.06	0.25	4.31	32.19	49.30	4.34	2.09	6.25	99.07	99.07	0.82	100	100	
Gran 300	0.00	0.11	0.15	0.06	0.26	4.34	32.46	49.71	4.38	2.11	6.30	100	100				

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES AVANT ET
APRES CALCINATION 300°C - 18 heures SOL S4 NP**

matériau non pollué calciné à 500°C et tamisé à sec

S 4 NP 500°C - 18	Poids des sous fractions granulométriques obtenues par tamisage à sec des fractions granulométriques de brut calcinées 18h à 500°C														Total lignes	Poids pollué sec initial	PF 500°C-1 moyenne
classe	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04						
20-40	8.88	0	0	0	0.05	0.04	0.04	0.04	0.08	0.04	0	0	0	0	9.17	9.25	0.91
10-20		1.7	1.88	0.2	0.08	0.04	0.03	0.02	0.02	0	0	0	0	0	3.77	3.81	1.00
5-10			8.61	0.3	0.04	0.03	0.04	0.08	0.03	0.02	0	0	0	0	9.15	9.39	2.52
2.5-5				2.9	0.27	0.02	0.03	0.03	0.04	0.02	0	0	0	0	3.31	3.40	2.52
1.25-2.5					7.04	8.89	0.88	0.65	0.19	0.1	0.11	0.11	0.11	0.11	17.86	18.26	2.20
0.63-1.25						19.55	37.82	13.37	1.57	0.54	0.35	0.35	0.35	0.35	73.2	74.14	1.27
0.315-0.63							55.18	18.58	1.42	0.39	0.25	0.25	0.25	0.25	75.82	76.58	0.99
0.16-0.315								63.70	2.10	0.14	0.08	0.08	0.08	0.08	66.02	66.45	0.65
0.08-0.16									62.61	1.2	0.13	0.13	0.13	0.13	63.94	64.64	1.08
0.04-0.08										43.79	3.78	47.57	48.42	48.42	48.42	48.42	1.76
<0.04											34.11	34.11	34.11	34.11	34.11	35.98	5.21
total colonne	8.88	1.7	10.29	3.4	7.48	28.57	94.02	96.47	68.06	46.24	38.81						

S 4 NP 500°C - 18 poids en grammes des sous fractions granulométriques récupérées à l'issue du tamisage à sec des fractions granulométriques de stap calciné recalculées pour 100g																
Classes	20-40	10-20	5-10	2.5-5	1.25-2.5	0.63-1.25	0.315-0.63	0.16-0.315	0.08-0.16	0.04-0.08	<0.04	Total lignes	PF 500-18h %	Poids initial pour 100g de brut sec %	%	
20-40	0.11	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.11	0.001	0.12	0.91	
10-20		0.06	0.06	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.13	0.13	0.13	1.00	
5-10			0.17	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.18	0.005	0.19	2.52	
2.5-5				0.06	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.07	0.002	0.07	2.52	
1.25-2.5					0.23	0.30	0.03	0.02	0.01	0.00	0.00	0.59	0.013	0.61	2.2	
0.63-1.25						3.67	7.09	2.51	0.29	0.10	0.07	13.73	0.177	13.91	1.27	
0.315-0.63							27.91	9.40	0.72	0.20	0.13	38.36	0.384	38.74	0.99	
0.16-0.315								32.92	1.09	0.07	0.04	34.12	0.223	34.35	0.65	
0.08-0.16									3.33	0.06	0.01	3.40	0.037	3.44	1.08	
0.04-0.08										1.99	0.17	2.16	0.039	2.20	1.76	
<0.04											5.93	5.93	0.326	6.26	5.21	
Total colonne	0.11	0.06	0.23	0.07	0.24	3.97	35.04	44.86	5.44	2.43	6.35	98.79	1.208	100	-	
Gran 500	0.11	0.06	0.23	0.07	0.25	4.01	35.47	45.41	5.51	2.46	6.43	100.00				

**RESULTATS DES GRANULOMETRIES EFFECTUEES AVANT ET
APRES CALCINATION 500°C - 18 heures SOL S4 NP**

RESULTATS DES TESTS DE PERMEABILITE EFFECTUES EN CELLULES ET COLONNES

Temps en heures	Volume en ml	Volume tot cumulé (ml)	Débit en ml/h	K m/s
0.033	261.27	261.27	7838.10	9.1E-06
0.067	261.02	522.29	7830.60	9.1E-06
0.083	253.46	775.75	15207.60	1.8E-05
0.100	245.13	1020.88	14707.80	1.7E-05
0.183	1021.67	2042.55	12260.04	1.4E-05
0.250	988.50	3031.05	14827.50	1.7E-05
0.333	1055.33	4086.38	12663.96	1.5E-05
0.400	852.40	4938.78	12786.00	1.5E-05
0.517	1029.86	5968.64	8827.37	1.0E-05
0.767	2816.36	8785.00	11265.44	1.3E-05
0.850	877.76	9662.76	10533.12	1.2E-05
0.933	830.66	10493.42	9967.92	1.2E-05
1.017	751.2	11244.62	9014.40	1.0E-05
1.100	692.06	11936.68	8304.72	9.7E-06
1.183	775.1	12711.78	9301.20	1.1E-05
1.283	903.56	13615.34	9035.60	1.1E-05
1.367	798.3	14413.64	9579.60	1.1E-05
1.450	604.36	15018.00	7252.32	8.4E-06
1.533	772.2	15790.20	9266.40	1.1E-05
1.817	2527.46	18317.66	8920.45	1.0E-05
2.250	3760.16	22077.82	8677.29	1.0E-05
2.333	717.6	22795.42	8611.20	1.0E-05
2.617	1049.06	23844.48	3702.56	4.3E-06
2.900	968.4	24812.88	3417.88	4.0E-06
3.333	1421.16	26234.04	3279.60	3.8E-06
3.583	892.4	27126.44	3569.60	4.2E-06
3.833	892.86	28019.30	3571.44	4.2E-06
4.100	840.3	28859.60	3151.13	3.7E-06
4.367	951.16	29810.76	3566.85	4.1E-06
4.617	829.7	30640.46	3318.80	3.9E-06

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé (ml)	Débit en ml/h	K m/s
0.217	202.72	202.72	935.63	1.1E-06
0.500	233.32	436.04	823.48	9.3E-07
0.817	266.09	702.13	840.28	9.5E-07
1.100	258.45	960.58	912.18	1.0E-06
1.500	275.24	1235.82	688.10	7.8E-07
1.833	250.76	1486.58	752.28	8.5E-07
2.167	196.40	1682.98	589.20	6.7E-07
2.633	212.97	1895.95	456.36	5.2E-07
3.633	500.86	2396.81	500.86	5.7E-07
7.517	975.10	3371.91	251.10	2.8E-07
9.933	1578.76	4950.67	653.28	7.4E-07
10.867	858.17	5808.84	919.47	1.0E-06
12.150	1458.70	7267.54	1136.65	1.3E-06
15.700	3104.96	10372.50	874.64	9.9E-07
18.100	1585.26	11957.76	660.53	7.5E-07
22.850	2446.67	14404.43	515.09	5.8E-07
27.850	2082.93	16487.36	416.59	4.7E-07
44.017	4984.37	21471.73	308.31	3.5E-07
51.083	1483.27	22955.00	209.90	2.4E-07
57.267	1666.48	24621.48	269.51	3.1E-07
74.350	4432.50	29053.98	259.46	2.9E-07
81.633	1768.27	30822.25	242.78	2.8E-07
98.667	3534.07	34356.32	207.48	2.4E-07
105.800	1539.67	35895.99	215.84	2.4E-07
123.250	3377.67	39273.66	193.56	2.2E-07
128.817	1144.67	40418.33	205.63	2.3E-07
145.950	3020.77	43439.10	176.31	2.0E-07
152.917	1034.07	44473.17	148.43	1.7E-07
170.900	2312.27	46785.44	128.58	1.5E-07
216.717	5222.5	52007.94	113.99	1.3E-07
225.067	1000.37	53008.31	119.80	1.4E-07
241.983	1833.27	54841.58	108.37	1.2E-07
247.550	679.47	55521.05	122.06	1.4E-07
265.717	2004.07	57525.12	110.32	1.3E-07
271.250	561.07	58086.19	101.40	1.1E-07
289.750	1777.97	59864.16	96.11	1.1E-07
313.100	2632.37	62496.53	112.74	1.3E-07
317.733	456.27	62952.80	98.48	1.1E-07
383.833	7053	70005.80	106.70	1.2E-07

<2mm

ECH 3

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé ml	Débit en ml/h	K m/s
1	227.6	227.6	257.66	3.3E-07
1.867	211.79	439.39	215.38	2.8E-07
3.067	238.1	677.49	198.42	2.5E-07
4.500	251.24	928.73	175.28	2.2E-07
5.917	235.68	1164.41	166.36	2.1E-07
7.467	253.77	1418.18	163.72	2.1E-07
23.167	2703.56	4121.74	172.20	2.2E-07
24.467	264.14	4385.88	203.18	2.6E-07
25.800	276.53	4662.41	207.40	2.7E-07
26.917	253.33	4915.74	226.86	2.9E-07
27.867	236	5151.74	248.42	3.2E-07
29.033	259.76	5411.50	222.65	2.9E-07
29.778	224.18	5635.68	301.14	3.9E-07
30.661	246.37	5882.05	278.91	3.6E-07
31.528	267.34	6149.39	308.47	4.0E-07
47.794	3937.4	10086.79	242.05	3.1E-07
49.211	258.66	10345.45	182.58	2.3E-07
50.478	228.83	10574.28	180.66	2.3E-07
51.961	253.95	10828.23	171.20	2.2E-07
53.711	271.69	11099.92	155.25	2.0E-07
55.444	250.66	11350.58	144.61	1.9E-07
71.628	1858.06	13208.64	114.81	1.5E-07
74.644	277.03	13485.67	91.83	1.2E-07
76.511	167.17	13652.84	89.56	1.1E-07
80.111	288.5	13941.34	80.14	1.0E-07
95.194	1029.06	14970.40	68.22	8.8E-08
98.661	219.94	15190.34	63.44	8.1E-08
100.328	103.56	15293.90	62.14	8.0E-08
167.778	3477.46	18771.36	51.56	6.6E-08
173.778	241.82	19013.18	40.30	5.2E-08
192.594	688.96	19702.14	36.61	4.7E-08
216.728	825.66	20527.80	34.21	4.4E-08
240.361	752.76	21280.56	31.85	4.1E-08
263.911	688.67	21969.23	29.24	3.8E-08
269.194	169.99	22139.22	32.17	4.1E-08
334.878	1980.76	24119.98	30.16	3.9E-08
343.278	258.15	24378.13	30.73	3.9E-08
358.344	448.66	24826.79	29.78	3.8E-08
359.011	20.43	24847.22	30.65	3.9E-08
365.428	201.17	25048.39	31.35	4.0E-08
374.861	246.17	25294.56	26.10	3.3E-08
397.878	843.08	26137.64	36.63	4.7E-08
462.511	1460.56	27598.20	22.60	2.9E-08
469.628	222.21	27820.41	31.22	4.0E-08
474.461	204.19	28024.60	42.25	5.4E-08
495.544	785.03	28809.63	37.23	4.8E-08

<2mm

ECH 4

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé ml	Débit en ml/h	K m/s
3.583	708.03	708.03	197.59	2.2E-07
20.750	2470.79	3178.82	143.93	1.6E-07
28.033	957.69	4136.51	131.49	1.5E-07
45.367	2425.89	6562.4	139.96	1.6E-07
52.067	892.59	7454.99	133.22	1.5E-07
69.200	2424.39	9879.38	141.50	1.6E-07
76.150	922.89	10802.27	132.79	1.5E-07
94.117	2336.99	13139.26	130.07	1.5E-07
140.000	8187.98	21327.24	178.45	2.0E-07
148.283	2020.69	23347.93	243.95	2.7E-07
165.217	4123.4	27471.33	243.51	2.7E-07
170.650	1446.59	28917.92	266.24	3.0E-07
188.817	4074.39	32992.31	224.28	2.5E-07
194.367	1116.19	34108.5	201.12	2.3E-07
212.833	3387.49	37495.99	183.44	2.1E-07
236.250	4409.92	41905.91	188.32	2.1E-07
240.800	765.29	42671.2	168.20	1.9E-07
306.883	5237.59	47908.79	79.26	8.9E-08
308.383	125.2	48033.99	83.47	9.4E-08
309.417	83.83	48117.82	81.13	9.1E-08
333.661	1903.3	50021.12	78.50	8.8E-08

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé ml	Débit en ml/h	K m/s
0.183	4718.2	4718.2	25735.4	2.8E-05
0.267	2425.4	7143.5	29104.3	3.2E-05
0.367	2479.0	9622.5	24789.6	2.7E-05
0.533	3864.8	13487.2	23188.5	2.6E-05
0.633	3426.2	16913.4	34261.6	3.8E-05
0.767	3535.8	20449.1	26518.2	2.9E-05
0.900	3477.7	23926.8	26082.5	2.9E-05
1.050	3413.5	27340.3	22756.4	2.5E-05
1.100	1455.4	28795.6	29107.2	3.2E-05
1.333	3496.0	32291.6	14982.7	1.6E-05
1.517	3462.9	35754.4	18888.3	2.1E-05
1.700	3462.1	39216.5	18884.0	2.1E-05
1.867	3537.1	42753.6	21222.4	2.3E-05
2.017	3588.2	46341.7	23921.1	2.6E-05
2.167	3345.9	49687.6	22305.7	2.5E-05
2.333	3517.2	53204.7	21103.0	2.3E-05
2.483	3523.9	56728.6	23492.4	2.6E-05
2.650	3536.5	60265.1	21218.8	2.3E-05
2.800	3382.6	63647.6	22550.4	2.5E-05
3.517	3465.7	67113.3	4835.8	5.3E-06
4.250	3408.1	70521.3	4647.4	5.1E-06
5.000	3499.3	74020.6	4665.7	5.1E-06
5.883	4715.4	78736.0	5338.2	5.9E-06
6.467	3570.4	82306.3	6120.6	6.7E-06
6.950	3697.2	86003.5	7649.3	8.4E-06
7.633	3644.5	89648.0	5333.4	5.9E-06
8.233	3647.9	93295.8	6079.8	6.7E-06
9.000	3507.8	96803.6	4575.3	5.0E-06
9.700	3406.3	100209.8	4866.1	5.4E-06
10.350	3523.5	103733.3	5420.7	6.0E-06
10.867	3476.6	107209.9	6728.8	7.4E-06
11.150	2303.6	109513.4	8130.2	8.9E-06
11.533	3518.1	113031.5	9177.5	1.0E-05
11.900	3596.3	116627.7	9808.0	1.1E-05
12.283	3576.6	120204.3	9330.2	1.0E-05
12.483	1865.0	122069.3	9324.8	1.0E-05
13.500	3480.2	125549.4	3423.1	3.8E-06
14.583	3528.7	129078.1	3257.2	3.6E-06
15.600	3561.5	132639.6	3503.1	3.9E-06
16.483	3471.3	136110.8	3929.7	4.3E-06
16.983	3474.6	139585.4	6949.1	7.6E-06
17.650	4243.7	143829.1	6365.6	7.0E-06
18.100	3631.6	147460.7	8070.1	8.9E-06
19.017	8381.8	155842.4	9143.8	1.0E-05
20.100	10000.0	165842.4	9230.8	1.0E-05
20.983	10000.0	175842.4	11320.8	1.2E-05
21.683	7000.0	182842.4	10000.0	1.1E-05
24.833	10000.0	192842.4	3174.6	3.5E-06
26.067	6559.3	199401.8	5318.4	5.9E-06
27.267	10000.0	209401.8	8333.3	9.2E-06
27.750	4380.1	213781.9	9062.3	1.0E-05
28.750	2497.4	216279.2	2497.4	2.7E-06
33.983	10000.0	226279.2	1910.8	2.1E-06
36.283	10000.0	236279.2	4347.8	4.8E-06
38.783	8645.7	244924.9	3458.3	3.8E-06
41.533	4223.7	249148.7	1535.9	1.7E-06
45.783	10000.0	259148.7	2352.9	2.6E-06
47.767	10000.0	269148.7	5042.0	5.5E-06
48.700	5118.5	274267.2	5484.1	6.0E-06
50.117	10000.0	284267.2	7058.8	7.8E-06
51.317	10600.0	294867.2	8833.3	9.7E-06
52.517	10000.0	304867.2	8333.3	9.2E-06
52.950	3193.3	308060.5	7369.1	8.1E-06
55.333	6819.2	314879.7	2861.2	3.1E-06
57.183	10000.0	324879.7	5405.4	5.9E-06
58.050	5616.2	330495.9	6480.3	7.1E-06
59.767	10000.0	340495.9	5825.2	6.4E-06
60.267	2754.4	343250.3	5508.7	6.1E-06
63.517	5645.2	348895.5	1737.0	1.9E-06
65.683	3449.9	352345.4	1592.2	1.8E-06
70.633	10000.0	362345.4	2020.2	2.2E-06
71.600	2642.3	364987.6	2733.4	3.0E-06

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé ml	Débit en ml/h	K m/s
73.683	5828.9	370816.6	2797.9	3.1E-06
78.933	6982.2	377798.8	1329.9	1.5E-06
86.433	8782.5	386581.3	1171.0	1.3E-06
89.067	5983.3	392564.6	2272.2	2.5E-06
93.983	8850.0	401414.6	1800.0	2.0E-06
99.833	10000.0	411414.6	1709.4	1.9E-06
102.833	10000.0	421414.6	3333.3	3.7E-06
105.778	8133.1	429547.7	2762.2	3.0E-06
107.394	4447.7	433995.4	2751.2	3.0E-06
110.911	3844.2	437839.6	1093.1	1.2E-06
113.861	6778.8	444618.5	2297.9	2.5E-06
116.828	10000.0	454618.5	3370.8	3.7E-06
119.494	7271.0	461889.5	2726.6	3.0E-06
121.328	4654.0	466543.5	2538.5	2.8E-06
126.744	7662.5	474206.0	1414.6	1.6E-06
129.594	10000.0	484206.0	3508.8	3.9E-06
131.111	5409.6	489615.6	3566.8	3.9E-06
135.094	4221.3	493836.9	1059.7	1.2E-06
137.878	6059.5	499896.4	2177.1	2.4E-06
140.278	10000.0	509896.4	4166.7	4.6E-06
142.428	10000.0	519896.4	4651.2	5.1E-06
142.878	1814.0	521710.4	4031.0	4.4E-06
149.094	9555.4	531265.8	1537.1	1.7E-06
151.594	9000.0	540265.8	3600.0	4.0E-06
154.378	8200.0	548465.8	2946.1	3.2E-06
155.261	2228.5	550694.3	2522.8	2.8E-06
158.378	10000.0	560694.3	3208.6	3.5E-06
160.028	5386.1	566080.3	3264.3	3.6E-06
162.194	10200.0	576280.3	4707.7	5.2E-06
164.278	8400.0	584680.3	4032.0	4.4E-06
164.611	2167.2	586847.5	6501.5	7.2E-06
166.278	10000.0	596847.5	6000.0	6.6E-06
167.444	6500.0	603347.5	5571.4	6.1E-06
168.894	7200.0	610547.5	4965.5	5.5E-06
173.161	11300.0	621847.5	2648.4	2.9E-06
175.428	10000.0	631847.5	4411.8	4.9E-06
175.811	1799.8	633647.3	4695.1	5.2E-06
178.250	10000.0	643647.3	4100.2	4.5E-06
180.317	10500.0	654147.3	5080.6	5.6E-06
182.233	10000.0	664147.3	5217.4	5.7E-06
184.267	10000.0	674147.3	4918.0	5.4E-06
184.983	2448.7	676595.9	3416.7	3.8E-06
188.150	5757.1	682353.0	1818.0	2.0E-06
191.067	10400.0	692753.0	3565.7	3.9E-06
193.983	10500.0	703253.0	3600.0	4.0E-06
216.817	6169.4	709422.5	270.2	3.0E-07
221.150	2468.8	711891.2	569.7	6.3E-07
223.783	1147.1	713038.3	435.6	4.8E-07
230.033	5425.4	718463.7	868.1	9.5E-07

<2mm

ECH 6

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé ml	Débit en ml/h	K m/s
1.700	51.2	51.17	30.10	3.3E-08
17.433	312.4	363.57	19.86	2.2E-08
23.000	104.7	468.28	18.81	2.1E-08
26.000	59.1	527.33	19.68	2.2E-08
41.300	300.6	827.94	19.65	2.2E-08
42.633	24.0	851.90	17.97	2.0E-08
48.250	97.9	949.78	17.43	1.9E-08
51.833	63.2	1012.94	17.63	1.9E-08
56.317	75.9	1088.81	16.92	1.9E-08
71.583	255.7	1344.52	16.75	1.8E-08
73.267	27.6	1372.07	16.37	1.8E-08
79.617	100.1	1472.14	15.76	1.7E-08
95.667	236.7	1708.79	14.74	1.6E-08
98.050	40.1	1748.84	16.80	1.8E-08
100.517	38.2	1787.01	15.47	1.7E-08
103.383	53.2	1840.17	18.54	2.0E-08
118.733	249.0	2089.14	16.22	1.8E-08
122.717	64.1	2153.21	16.08	1.8E-08
125.933	54.6	2207.79	16.97	1.9E-08
142.517	282.7	2490.50	17.05	1.9E-08
144.733	37.9	2528.35	17.08	1.9E-08
145.267	9.4	2537.78	17.68	1.9E-08
149.733	87.4	2625.14	19.56	2.2E-08
154.667	103.3	2728.41	20.93	2.3E-08
158.017	69.1	2797.54	20.64	2.3E-08
174.133	294.5	3092.02	18.27	2.0E-08
180.200	113.4	3205.38	18.69	2.1E-08
197.367	332.1	3537.45	19.34	2.1E-08
199.417	42.4	3579.81	20.66	2.3E-08
204.750	146.0	3725.78	27.37	3.0E-08
221.400	349.2	4075.01	20.97	2.3E-08
228.750	174.0	4249.05	23.68	2.6E-08
236.267	200.9	4449.99	26.73	2.9E-08
252.550	355.4	4805.42	21.83	2.4E-08
258.300	142.5	4947.92	24.78	2.7E-08
276.633	517.5	5465.45	28.23	3.1E-08
281.133	123.8	5589.21	27.50	3.0E-08
300.500	581.5	6170.74	30.03	3.3E-08
305.900	169.8	6340.53	31.44	3.5E-08
326.067	708.0	7048.56	35.11	3.9E-08
331.650	244.9	7293.43	43.86	4.8E-08
396.300	4716.1	12009.54	72.95	8.0E-08
400.333	410.2	12419.77	101.71	1.1E-07
420.083	2126.9	14546.67	107.69	1.2E-07
422.800	297.2	14843.89	109.41	1.2E-07
427.667	571.8	15415.72	117.50	1.3E-07
450.283	2034.2	17449.92	89.94	9.9E-08
452.233	164.6	17614.52	84.41	9.3E-08
471.333	1522.2	19136.72	79.70	8.8E-08
496.083	1538.2	20674.92	62.15	6.8E-08
564.633	4435.9	25110.79	64.71	7.1E-08
567.950	250.9	25361.70	75.65	8.3E-08
590.133	1972.9	27334.60	88.94	9.8E-08
592.617	243.3	27577.91	97.98	1.1E-07
616.300	2449.2	30027.11	103.41	1.1E-07
639.600	2370.7	32397.81	101.75	1.1E-07
642.850	320.5	32718.35	98.63	1.1E-07
664.017	805.6	33523.95	38.06	4.2E-08
731.483	2359.4	35883.35	34.97	3.8E-08
737.067	145.5	36028.83	26.06	2.9E-08

<2mm

ECH 7

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé (ml)	debit en ml/h	K m/s
5.850	2992.80	2992.80	511.59	5.7E-07
8.167	972.60	3965.40	419.83	4.6E-07
23.750	8507.03	12472.43	545.91	6.0E-07
32.083	7401.23	19873.66	888.15	9.8E-07
47.583	8922.36	28796.02	575.64	6.4E-07
55.500	4300.03	33096.05	543.16	6.0E-07
71.250	6430.83	39526.88	408.31	4.5E-07
78.333	2576.30	42103.18	363.71	4.0E-07
87.000	3771.23	45874.41	435.14	4.8E-07
102.500	5869.23	51743.64	378.66	4.2E-07
109.583	2615.70	54359.34	369.28	4.1E-07
133.500	10596.33	64955.67	443.05	4.9E-07
151.667	7910.03	72865.70	435.41	4.8E-07
174.250	9712.50	82578.20	430.07	4.8E-07
179.083	1871.00	84449.20	387.10	4.3E-07
182.083	1383.20	85832.40	461.07	5.1E-07
189.583	3990.33	89822.73	532.04	5.9E-07
205.833	6267.6	96090.33	385.70	4.3E-07
213.750	3317.7	99408.03	419.08	4.6E-07
231.167	6292.5	105700.53	361.29	4.0E-07
235.167	1381.7	107082.23	345.43	3.8E-07
253.667	11666	118748.23	630.59	7.0E-07
277.750	8812.3	127560.53	365.91	4.0E-07
285.417	2923.3	130483.83	381.30	4.2E-07
305.000	6993.9	137477.73	357.14	3.9E-07
330.750	8623.3	146101.03	334.89	3.7E-07

<20mm

ECH 8

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé (ml)	Débit ml/h	K m/s
8.167	435.6	435.6	53.34	5.5E-08
23.917	546.4	982.0	34.69	3.6E-08
32.083	280.1	1262.1	34.30	3.6E-08
47.583	459.2	1721.3	29.63	3.1E-08
55.500	266.8	1988.2	33.71	3.5E-08
71.250	475.1	2463.3	30.17	3.1E-08
78.333	211.2	2674.5	29.82	3.1E-08
143.083	1901.1	4575.6	29.36	3.0E-08
151.750	320.4	4896.1	36.97	3.8E-08
167.250	646.6	5542.7	41.72	4.3E-08
174.333	324.4	5867.1	45.80	4.7E-08
198.250	1222.2	7089.3	51.10	5.3E-08
216.417	970.9	8060.2	53.44	5.5E-08
239.000	1386.7	9446.9	61.40	6.4E-08
243.833	281.8	9728.7	58.31	6.0E-08
310.750	2952.7	12681.4	44.13	4.6E-08
318.500	657.1	13338.6	84.79	8.8E-08
334.750	1147.8	14486.4	70.63	7.3E-08
342.667	658.6	15145.0	83.20	8.6E-08
360.083	1279.3	16424.3	73.45	7.6E-08
364.083	303.2	16727.6	75.81	7.9E-08
382.583	1435.7	18163.3	77.61	8.0E-08
406.667	1843.1	20006.4	76.53	7.9E-08
414.333	661.6	20668.0	86.30	8.9E-08
433.917	1175.1	21843.1	60.01	6.2E-08
459.667	1747.3	23590.4	67.86	7.0E-08

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé (ml)	Débit ml/h	K m/s
16.083	118.1	118.1	7.34	7.6E-09
24.250	67.7	185.8	8.29	8.5E-09
40.000	106.2	292.1	6.74	6.9E-09
48.167	58.7	350.7	7.19	7.4E-09
63.667	93.7	444.4	6.04	6.2E-09
71.583	58.7	503.2	7.42	7.6E-09
87.333	92.7	595.9	5.89	6.1E-09
94.417	45.5	641.4	6.42	6.6E-09
159.167	334.4	975.8	5.16	5.3E-09
167.833	50.1	1025.8	5.76	6.0E-09
183.333	79.6	1105.4	5.14	5.3E-09
190.417	40.4	1145.8	5.70	5.9E-09
214.333	122.3	1268.1	5.11	5.3E-09
232.500	96.8	1364.9	5.33	5.5E-09
255.083	109.6	1474.5	4.85	5.0E-09
259.917	26.1	1500.5	5.40	5.6E-09
326.833	313.3	1813.8	4.68	4.8E-09

ECH 9

<20mm

<20mm

ECH 10

<20mm

ECH 11

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé ml	Débit en ml/h	K m/s
0.233	3174.1	3174.1	13603.29	1.5E-05
0.667	3239.2	6413.3	7475.10	8.2E-06
0.950	1449.5	7862.8	5115.92	5.6E-06
1.100	608.9	8471.7	4059.40	4.5E-06
1.367	653.1	9124.8	2449.16	2.7E-06
1.500	235.0	9359.9	1762.80	1.9E-06
2.800	2338.6	11698.5	1798.93	2.0E-06
8.233	3496.3	15194.8	643.49	7.1E-07
11.183	2765.6	17960.4	937.49	1.0E-06
12.517	1248.4	19208.8	936.31	1.0E-06
17.050	3421.5	22630.3	754.74	8.3E-07
18.133	570.8	23201.1	526.90	5.8E-07
21.717	2239.3	25440.5	624.92	6.9E-07
26.167	2074.5	27515.0	466.18	5.1E-07
27.850	756.8	28271.8	449.59	4.9E-07
34.133	2087.6	30359.4	332.25	3.7E-07
36.467	795.0	31154.4	340.72	3.7E-07
38.933	760.8	31915.2	308.44	3.4E-07
41.850	840.1	32755.3	288.04	3.2E-07
57.167	2883.6	35638.9	188.27	2.1E-07
61.100	549.4	36188.3	139.68	1.5E-07
64.350	482.1	36670.4	148.34	1.6E-07
80.933	2407.2	39077.7	145.16	1.6E-07
83.117	303.0	39380.7	138.78	1.5E-07
83.683	75.6	39456.2	133.36	1.5E-07
88.150	760.0	40216.2	170.15	1.9E-07
93.083	976.6	41192.9	197.96	2.2E-07
96.500	696.0	41888.9	203.71	2.2E-07
112.583	2433.8	44322.7	151.32	1.7E-07
118.733	785.0	45107.7	127.64	1.4E-07
135.817	2004.5	47112.2	117.34	1.3E-07
137.833	206.7	47318.9	102.48	1.1E-07
143.183	804.5	48123.4	150.38	1.7E-07
159.833	1605.4	49728.8	96.42	1.1E-07
167.167	699.4	50428.2	95.37	1.0E-07
174.633	862.1	51290.3	115.46	1.3E-07
190.983	813.5	52103.8	49.76	5.5E-08
196.750	225.0	52328.8	39.01	4.3E-08
215.100	681.1	53009.9	37.12	4.1E-08
219.550	169.7	53179.6	38.14	4.2E-08
238.933	732.3	53911.9	37.78	4.2E-08
244.350	197.5	54109.4	36.45	4.0E-08
264.483	1069.8	55179.2	53.14	5.8E-08
270.067	399.6	55578.7	71.56	7.9E-08
334.683	5116.7	60695.4	79.18	8.7E-08
338.700	335.9	61031.3	83.62	9.2E-08
358.450	1401.9	62433.1	70.98	7.8E-08
361.150	158.1	62591.2	58.55	6.4E-08
366.033	305.3	62896.5	62.51	6.9E-08
388.567	771.9	63668.4	34.26	3.8E-08
390.600	62.9	63731.3	30.92	3.4E-08
409.700	616.4	64347.7	32.27	3.6E-08
434.200	887.8	65235.5	36.24	4.0E-08
502.700	4144.8	69380.3	60.51	6.7E-08
506.067	251.8	69632.1	74.80	8.2E-08
528.233	1630.8	71262.9	73.57	8.1E-08
530.733	178.3	71441.2	71.32	7.8E-08
554.417	1684.0	73125.2	71.10	7.8E-08
577.717	1593.8	74719.0	68.40	7.5E-08
580.967	201.5	74920.5	61.99	6.8E-08
602.133	614.5	75535.0	29.03	3.2E-08
669.600	1531.3	77066.3	22.70	2.5E-08
675.183	111.7	77177.9	20.00	2.2E-08

Temps en heures	Volume en ml	Volume total cumulé	Débit en ml/h	K m/s
1.083	168.2	168.20	155.26	1.7E-07
2.250	242.8	410.97	208.09	2.3E-07
2.783	104.8	515.76	196.48	2.2E-07
18.533	2853.2	3368.93	181.15	2.0E-07
19.517	188.9	3557.84	192.11	2.1E-07
24.033	972.1	4529.91	215.22	2.4E-07
27.067	755.7	5285.58	249.12	2.7E-07
42.333	3990.9	9276.46	261.41	2.9E-07
43.250	311.7	9588.13	340.00	3.7E-07
47.717	1031.1	10619.20	230.84	2.5E-07
48.867	266.5	10885.67	231.71	2.5E-07
52.450	806.3	11691.94	225.01	2.5E-07
56.883	1029.0	12720.91	232.10	2.6E-07
72.200	2741.9	15462.77	179.01	2.0E-07
73.883	211.3	15674.04	125.51	1.4E-07
80.283	871.1	16545.11	136.10	1.5E-07
96.283	1645.7	18190.77	102.85	1.1E-07
98.650	227.3	18418.04	96.03	1.1E-07
101.100	234.6	18652.61	95.74	1.1E-07
104.050	331.5	18984.08	112.36	1.2E-07
119.350	1427.1	20411.14	93.27	1.0E-07
123.250	325.1	20736.21	83.35	9.2E-08
125.267	189.0	20925.19	93.71	1.0E-07
126.517	109.5	21034.69	87.60	9.6E-08
143.133	1455.9	22490.55	87.61	9.6E-08
145.250	170.6	22661.16	80.60	8.9E-08
145.850	48.2	22709.33	80.28	8.8E-08
150.317	436.1	23145.40	97.63	1.1E-07
155.250	439.2	23584.57	89.02	9.8E-08
158.733	363.4	23947.94	104.32	1.1E-07
174.767	1368.5	25316.40	85.35	9.4E-08
180.983	519.1	25835.47	83.50	9.2E-08
198.000	1362.2	27197.63	80.05	8.8E-08
200.000	145.6	27343.24	72.81	8.0E-08
205.367	542.6	27885.81	101.10	1.1E-07
222.017	1098.6	28984.37	65.98	7.3E-08
229.333	475.6	29459.94	65.00	7.1E-08
236.717	503.7	29963.61	68.22	7.5E-08
253.200	992.9	30956.47	60.23	6.6E-08
258.967	314.3	31270.74	54.50	6.0E-08
277.133	1091.3	32362.01	60.07	6.6E-08
281.717	234.4	32596.38	51.14	5.6E-08
301.133	1053.3	33649.64	54.25	6.0E-08
306.550	268.0	33917.61	49.47	5.4E-08
326.650	999.8	34917.37	49.74	5.5E-08
332.233	320.5	35237.91	57.41	6.3E-08
396.783	3219.1	38456.97	49.87	5.5E-08
400.833	199.4	38656.38	49.24	5.4E-08
420.583	991.9	39648.29	50.22	5.5E-08
423.250	123.8	39772.11	46.43	5.1E-08
428.167	239.1	40011.18	48.62	5.3E-08
450.667	1037.2	41048.34	46.10	5.1E-08
452.733	95.7	41144.04	46.31	5.1E-08
471.833	884.9	42028.90	46.33	5.1E-08
496.583	1052.9	43081.76	42.54	4.7E-08
565.067	2954.8	46036.52	43.15	4.7E-08
568.450	136.9	46173.43	40.47	4.5E-08
590.583	908.1	47081.49	41.03	4.5E-08
593.117	100.0	47181.51	39.48	4.3E-08
616.800	928.9	48110.42	39.22	4.3E-08
640.100	962.6	49072.98	41.31	4.5E-08
643.350	129.4	49202.41	39.82	4.4E-08
664.517	770.4	49972.77	36.39	4.0E-08
731.983	2508.8	52481.53	37.19	4.1E-08
737.567	194.9	52676.47	34.91	3.8E-08

Temps cumu (j)	Volume (ml)	Débit ml/h	Volume cumulé ml	K m/s
0.038	158.4	176.00	158.4	1.8E-07
0.109	573.5	334.09	731.9	3.4E-07
0.141	235.7	307.46	967.6	3.1E-07
0.833	5098.8	306.85	6066.4	3.1E-07
1.179	2883.7	347.43	8950.1	3.5E-07
1.833	5225.4	332.83	14175.5	3.3E-07
1.910	622.7	339.65	14798.2	3.4E-07
2.156	2509.9	424.21	17308.1	4.3E-07
2.833	6290.0	387.08	23598.1	3.9E-07
3.142	2831.2	381.73	26429.3	3.8E-07
3.885	6898.8	386.85	33328.1	3.9E-07
5.101	9735.7	333.79	43063.7	3.4E-07
5.816	5288.3	308.06	48352.0	3.1E-07
6.178	2654.1	305.07	51006.1	3.1E-07
6.448	1968.5	304.41	52974.6	3.1E-07
6.753	1537.0	209.59	54511.6	2.1E-07
7.420	2863.3	178.96	57374.9	1.8E-07
7.767	1487.8	178.54	58862.7	1.8E-07
8.410	2446.2	158.67	61308.9	1.6E-07
8.743	1286.5	160.81	62595.4	1.6E-07
9.427	2534.2	154.37	65129.6	1.6E-07
9.722	1404.7	198.31	66534.3	2.0E-07
12.413	12891.3	199.61	79425.6	2.0E-07
13.056	2531.2	164.19	81956.8	1.6E-07
14.056	4392.5	183.02	86349.3	1.8E-07
14.403	1450.2	174.02	87799.5	1.7E-07
15.069	3189.3	199.33	90988.8	2.0E-07
15.378	1432.2	193.11	92421.0	1.9E-07
16.097	3309.7	191.86	95730.6	1.9E-07
16.438	1350.2	165.33	97080.8	1.7E-07
17.090	3113.5	198.95	100194.3	2.0E-07
17.444	1643.7	193.38	101838.0	1.9E-07
18.090	3004.5	193.84	104842.5	1.9E-07
18.437	1652.2	198.26	106494.7	2.0E-07
19.076	2896.8	188.92	109391.6	1.9E-07
20.076	4562.0	190.08	113953.6	1.9E-07
21.076	4358.2	181.59	118311.8	1.8E-07
22.083	4574.8	189.30	122886.6	1.9E-07

Temps cumulé (j)	Volume (ml)	Débit ml/h	Volume cumulé (ml)	K m/s
0.094	628.9	279.51	628.9	2.8E-07
0.261	844.7	210.30	1473.6	2.1E-07
0.927	3161.8	197.82	4635.4	2.0E-07
1.038	664.3	249.12	5299.7	2.5E-07
1.212	838.5	201.24	6138.2	2.0E-07
1.309	664.8	284.92	6803.1	2.9E-07
1.994	5168.3	314.50	11971.3	3.2E-07
2.077	590.5	295.26	12561.9	3.0E-07
2.269	1230.6	266.56	13792.5	2.7E-07
4.953	12894.9	200.18	26687.4	2.0E-07
5.294	1757.7	215.23	28445.1	2.2E-07
5.953	3141.4	198.40	31586.5	2.0E-07
6.308	1743.4	205.11	33329.9	2.1E-07
6.953	3004.2	193.82	36334.1	1.9E-07
7.953	4672.7	194.70	41006.8	2.0E-07
8.301	1601.3	192.16	42608.1	1.9E-07
8.953	2693.4	171.92	45301.5	1.7E-07
9.262	1303.2	176.11	46604.7	1.8E-07
11.944	10718.9	166.49	57323.6	1.7E-07
12.306	1375.8	158.75	58699.4	1.6E-07
12.944	2207.8	143.99	60907.2	1.4E-07
13.267	1283.5	165.61	62190.7	1.7E-07
13.976	2335.7	137.39	64526.4	1.4E-07
14.299	1049.3	135.39	65575.7	1.4E-07
14.942	1799.4	116.47	67375.1	1.2E-07
15.292	968.5	115.53	68343.6	1.2E-07
15.944	1534.4	97.94	69878.0	9.8E-08
16.008	150.8	98.35	70028.8	9.9E-08
16.228	658.6	125.05	70687.4	1.3E-07
18.936	6701.9	103.11	77389.3	1.0E-07
19.992	2458.9	97.06	79848.2	9.7E-08
20.250	636.7	102.69	80484.9	1.0E-07
20.936	1760.6	106.92	82245.5	1.1E-07
21.282	904.1	108.93	83149.6	1.1E-07
21.936	1481.4	94.36	84631.0	9.5E-08
22.013	161.2	87.91	84792.2	8.8E-08
22.259	609.5	103.02	85401.7	1.0E-07
22.936	1459.8	89.83	86861.5	9.0E-08
23.245	648.8	87.48	87510.3	8.8E-08
23.992	1593.4	88.85	89103.7	8.9E-08
25.207	2407.9	82.60	91511.6	8.3E-08
25.919	1323.7	77.48	92835.3	7.8E-08
26.281	619.3	71.19	93454.6	7.1E-08
26.655	635.7	70.90	94090.3	7.1E-08
26.960	171.8	23.42	94262.1	2.4E-08
27.627	49.8	3.11	94311.8	3.1E-09
27.974	233.5	28.02	94545.3	2.8E-08
28.617	371.8	24.12	94917.2	2.4E-08
28.950	185.6	23.19	95102.7	2.3E-08
29.634	413.4	25.18	95516.1	2.5E-08
29.929	235.7	33.28	95751.9	3.3E-08
32.620	1821.3	28.20	97573.2	2.8E-08

<2mm

ECH 14

Temps cumulé (j)	Volume (ml)	Débit ml/h	Volume cumulé (ml)	K m/s
0.117	86.4	30.86	86.4	3.1E-08
0.835	505.7	29.32	592.1	2.9E-08
1.075	159.8	27.79	751.9	2.8E-08
2.083	604.0	24.98	1355.9	2.5E-08
4.825	1376.4	20.91	2732.3	2.1E-08
5.167	191.3	23.33	2923.7	2.3E-08
5.825	367.5	23.26	3291.2	2.3E-08
6.179	216.1	25.43	3507.3	2.6E-08
6.825	381.2	24.59	3888.5	2.5E-08
7.825	624.4	26.02	4512.9	2.6E-08
8.172	217.5	26.10	4730.4	2.6E-08
8.825	378.8	24.18	5109.2	2.4E-08
9.134	189.7	25.58	5298.9	2.6E-08
11.817	1664.4	25.85	6963.3	2.6E-08
12.178	229.2	26.45	7192.5	2.7E-08
12.817	388.7	25.35	7581.2	2.5E-08
13.140	233.3	30.10	7814.5	3.0E-08
13.848	464.2	27.31	8278.7	2.7E-08
14.171	214.4	27.66	8493.1	2.8E-08
14.815	393.1	25.44	8886.2	2.6E-08
15.164	222.9	26.59	9109.1	2.7E-08
15.817	365.3	23.32	9474.4	2.3E-08
15.881	36.4	23.75	9510.8	2.4E-08
16.100	161.7	30.69	9672.5	3.1E-08
18.808	1695.3	26.08	11367.7	2.6E-08
19.864	677.5	26.74	12045.2	2.7E-08
20.124	186.6	29.94	12231.9	3.0E-08
20.808	497.9	30.30	12729.8	3.0E-08
21.154	267.5	32.22	12997.2	3.2E-08
21.808	466.6	29.72	13463.8	3.0E-08
21.885	54.1	29.53	13518.0	3.0E-08
22.131	207.4	35.06	13725.4	3.5E-08
22.808	522.2	32.14	14247.6	3.2E-08
23.117	239.6	32.30	14487.2	3.2E-08
23.866	605.9	33.72	15093.1	3.4E-08
25.081	980.1	33.62	16073.2	3.4E-08
25.791	571.1	33.50	16644.3	3.4E-08
26.153	281.1	32.31	16925.4	3.2E-08
26.621	362.4	32.30	17287.8	3.2E-08
26.927	168.4	22.97	17456.3	2.3E-08
27.593	540.3	33.77	17996.6	3.4E-08
27.940	730.1	87.61	18726.6	8.8E-08
28.583	982.8	63.75	19709.4	6.4E-08
29.164	1146.9	82.25	20856.3	8.3E-08
29.848	1482.4	90.30	22338.7	9.1E-08
30.305	1645.3	149.95	23984.0	1.5E-07
32.996	2973.4	46.04	26957.3	4.6E-08

<10mm

ECH 21

Temps cumulé (j)	Volume (ml)	Débit (ml/h)	Débit l/h	Volume cumulé (ml)	K (m/s)
0.003	2036.10	24433.20	24.4332	2036.1	2.5E-05
0.008	1713.80	14689.71	14.69	3749.9	1.5E-05
0.022	10782.00	34048.42	34.05	14531.9	3.4E-05
0.077	4815.20	36114.00	36.11	19347.1	3.6E-05
0.051	14553.70	25683.00	25.68	33900.8	2.6E-05
0.077	13263.90	20943.00	20.94	47164.7	2.1E-05
0.133	18900.60	14000.44	14.00	66065.3	1.4E-05
0.169	10486.00	12336.47	12.34	76551.3	1.2E-05
0.201	12300.00	15702.13	15.70	88851.3	1.6E-05
0.226	8461.00	14504.57	14.50	97312.3	1.5E-05
0.259	10510.20	13137.75	13.14	107822.5	1.3E-05
0.311	17690.50	14152.40	14.15	125513	1.4E-05
0.358	15030.30	13262.03	13.26	140543.3	1.3E-05
0.392	10520.30	12882.00	12.88	151063.6	1.3E-05
0.435	12811.80	12398.52	12.40	163875.4	1.2E-05
0.492	20599.00	15072.44	15.07	184474.4	1.5E-05
0.551	21020.00	14837.65	14.84	205494.4	1.5E-05
0.604	17870.50	14108.29	14.11	223364.9	1.4E-05
0.657	11090.30	8755.50	8.76	234455.2	8.8E-06
0.708	11260.00	9129.73	9.13	245715.2	9.2E-06
0.751	9174.30	8878.35	8.88	254889.5	8.9E-06
0.786	6701.20	8041.44	8.04	261590.7	8.1E-06
0.812	6149.30	10062.49	10.06	267740	1.0E-05
0.849	8554.00	9504.44	9.50	276294	9.5E-06
0.897	10120.20	8800.17	8.80	286414.2	8.8E-06
0.952	11536.20	8761.67	8.76	297950.4	8.8E-06
1.011	10950.50	7729.76	7.73	308900.9	7.8E-06
1.090	15145.00	7971.05	7.97	324045.9	8.0E-06
1.133	10787.30	10439.32	10.44	334833.2	1.0E-05
1.172	8202.40	8788.29	8.79	343035.6	8.8E-06
1.239	13177.20	8150.85	8.15	356212.8	8.2E-06
1.326	16255.70	7802.74	7.80	372468.5	7.8E-06
1.392	9300.40	5873.94	5.87	381768.9	5.9E-06
1.403	2002.60	8010.40	8.01	383771.5	8.0E-06
1.428	4695.60	7826.00	7.83	388467.1	7.9E-06
1.455	4751.40	7127.10	7.13	393218.5	7.2E-06
1.539	11681.80	5792.63	5.79	404900.3	5.8E-06
1.607	7399.00	4576.70	4.58	412299.3	4.6E-06
1.633	10192.20	4740.56	4.74	422491.5	3.1E-06
1.633	10509.70	4888.23	4.89	422809	4.9E-06
1.674	9261.00	9261.50	9.26	432070	9.5E-06
1.744	11628.90	11628.90	11.63	443698.9	7.0E-06
1.865	11628.90	11628.90	11.63	455327.8	4.0E-06

Temps cumulé (h)	Volume (ml)	Débit l/h	Volume cumulé ml	K (m/s)
0.050	2013.77	40.28	2013.77	5.2E-04
0.133	1917.80	23.01	3931.57	2.9E-04
0.217	1951.97	23.42	5883.54	3.0E-04
0.300	1836.80	22.04	7720.34	2.8E-04
0.383	1763.57	21.16	9483.91	2.7E-04
0.483	1907.10	19.07	11391.01	2.4E-04
0.567	1749.57	20.99	13140.58	2.7E-04
0.650	1538.20	18.46	14678.78	2.4E-04
0.733	1514.47	18.17	16193.25	2.3E-04
0.817	1469.10	17.63	17662.35	2.3E-04
0.900	1578.77	18.95	19241.12	2.4E-04
0.983	1239.90	14.88	20481.02	1.9E-04
1.067	1327.27	15.93	21808.29	2.0E-04
1.150	1294.20	15.53	23102.49	2.0E-04
1.233	1314.77	15.78	24417.26	2.0E-04
1.317	1203.50	14.44	25620.76	1.8E-04
1.400	1234.07	14.81	26854.83	1.9E-04
1.417	366.80	22.01	27221.63	2.8E-04
1.517	1441.87	14.42	28663.50	1.8E-04
1.683	2134.80	12.81	30798.30	1.6E-04
1.850	2195.77	13.17	32994.07	1.7E-04
2.033	2407.20	13.13	35401.27	1.7E-04
2.267	2574.57	11.03	37975.84	1.4E-04
2.467	2530.20	12.65	40506.04	1.6E-04
2.633	1931.97	11.59	42438.01	1.5E-04
2.800	1732.60	10.40	44170.61	1.3E-04
2.917	1231.87	10.56	45402.48	1.4E-04
3.117	2063.40	10.32	47465.88	1.3E-04
3.333	2277.87	10.51	49743.75	1.3E-04
3.550	3087.00	14.25	52830.75	1.8E-04
3.733	3265.37	17.81	56096.12	2.3E-04
3.917	1951.10	10.64	58047.22	1.4E-04
4.150	2353.89	10.09	60401.11	1.3E-04
4.450	2795.40	9.32	63196.51	1.2E-04
4.767	2435.69	7.69	65632.20	9.8E-05
5.117	2388.30	6.82	68020.50	8.7E-05
5.467	2476.79	7.08	70497.29	9.0E-05
5.867	2886.50	7.22	73383.79	9.2E-05
6.300	2878.09	6.64	76261.88	8.5E-05
6.783	3157.10	6.53	79418.98	8.4E-05
7.350	3768.39	6.65	83187.37	8.5E-05
7.783	2878.10	6.64	86065.47	8.5E-05
8.483	4509.32	6.44	90574.79	8.2E-05
8.733	1562.30	6.25	92137.09	8.0E-05
8.883	1092.80	7.29	93229.89	9.3E-05
9.267	2952.79	7.70	96182.68	9.9E-05
9.733	3253.50	6.97	99436.18	8.9E-05
10.233	3499.09	7.00	102935.27	8.9E-05
10.667	2914.30	6.73	105849.57	8.6E-05
11.167	3340.39	6.68	109189.96	8.5E-05
11.633	2884.00	6.18	112073.96	7.9E-05
12.167	3475.59	6.52	115549.55	8.3E-05
12.750	3705.90	6.35	119255.45	8.1E-05
13.167	2831.99	6.80	122087.44	8.7E-05
13.933	4830.13	6.30	126917.57	8.1E-05
14.467	3384.09	6.35	130301.66	8.1E-05
15.033	3422.50	6.04	133724.16	7.7E-05
15.533	3128.79	6.26	136852.95	8.0E-05
16.033	2994.40	5.99	139847.35	7.7E-05
16.600	3509.49	6.19	143356.84	7.9E-05
16.750	883.39	5.89	144240.23	7.5E-05
17.317	3698.00	6.53	147938.23	8.3E-05
18.167	5122.22	6.03	153060.45	7.7E-05
18.350	1218.40	6.65	154278.85	8.5E-05
19.050	4143.92	5.92	158422.77	7.6E-05
20.083	5892.23	5.70	164315.00	7.3E-05
20.650	3169.09	5.59	167484.09	7.2E-05
21.500	4773.23	5.62	172257.32	7.2E-05
22.250	3148.89	4.20	175406.21	5.4E-05
22.950	2646.70	3.78	178052.91	4.8E-05
23.567	2495.87	4.05	180548.78	5.2E-05
24.167	2337.29	3.90	182886.07	5.0E-05
24.783	2315.17	3.75	185201.24	4.8E-05
25.367	2515.79	4.31	187717.03	5.5E-05

Temps cumulé (h)	Volume (ml)	Débit l/h	Volume cumulé ml	K (m/s)
25.783	1614.07	3.87	189331.10	5.0E-05
26.483	2674.10	3.82	192005.20	4.9E-05
27.483	3651.27	3.65	195656.47	4.7E-05
28.261	2387.90	3.07	198044.37	3.9E-05
29.011	2805.07	3.74	200849.44	4.8E-05
29.628	2258.00	3.66	203107.44	4.7E-05
29.961	1669.30	5.01	204776.74	6.4E-05
30.828	3891.67	4.49	208668.41	5.7E-05
31.494	2706.90	4.06	211375.31	5.2E-05
32.028	2174.57	4.08	213549.88	5.2E-05
32.444	1798.00	4.32	215347.88	5.5E-05
32.994	2203.90	4.01	217551.78	5.1E-05
33.694	2858.20	4.08	220409.98	5.2E-05
34.411	2551.07	3.56	222961.05	4.6E-05
34.861	1335.00	2.97	224296.05	3.8E-05
35.678	1981.47	2.43	226277.52	3.1E-05
36.544	2369.90	2.73	228647.42	3.5E-05
36.961	1075.07	2.58	229722.49	3.3E-05
37.928	2239.00	2.32	231961.49	3.0E-05
39.811	2761.57	1.47	234723.06	1.9E-05
40.744	1881.20	2.02	236604.26	2.6E-05

<2mm

ECH 16

Temps cumulé (h)	Volume (ml)	Débit (l/h)	Volume cumulé (ml)	K (m/s)
0.100	2912.77	29.13	2912.77	3.7E-04
0.183	2586.30	31.04	5499.07	4.0E-04
0.283	2701.77	27.02	8200.84	3.5E-04
0.417	3174.90	23.81	11375.74	3.0E-04
0.550	2849.47	21.37	14225.21	2.7E-04
0.700	3001.80	20.01	17227.01	2.6E-04
0.883	3311.57	18.06	20538.58	2.3E-04
1.083	3205.30	16.03	23743.88	2.0E-04
1.317	3565.17	15.28	27309.05	2.0E-04
1.567	3562.40	14.25	30871.45	1.8E-04
1.700	2002.97	15.02	32874.42	1.9E-04
1.983	2711.60	9.57	35586.02	1.2E-04
2.383	3405.47	8.51	38991.49	1.1E-04
2.967	3465.90	5.94	42457.39	7.6E-05
3.617	3517.97	5.41	45975.36	6.9E-05
4.050	2426.10	5.60	48401.46	7.2E-05
4.800	3914.17	5.22	52315.63	6.7E-05
5.017	1135.90	5.24	53451.53	6.7E-05
5.167	1183.50	7.89	54635.03	1.0E-04
5.550	2632.47	6.87	57267.50	8.8E-05
6.017	2909.10	6.23	60176.60	8.0E-05
6.517	3143.57	6.29	63320.17	8.0E-05
6.950	2596.80	5.99	65916.97	7.7E-05
7.500	3220.77	5.86	69137.74	7.5E-05
8.000	3070.00	6.14	72207.74	7.9E-05
8.533	3292.87	6.17	75500.61	7.9E-05
9.083	3254.00	5.92	78754.61	7.6E-05
9.500	2436.80	5.85	81191.41	7.5E-05
10.267	4399.83	5.74	85591.24	7.3E-05
10.800	3252.87	6.10	88844.11	7.8E-05
11.367	3157.30	5.57	92001.41	7.1E-05
11.867	2824.07	5.65	94825.48	7.2E-05
12.367	2666.00	5.33	97491.48	6.8E-05
12.933	3074.87	5.43	100566.35	6.9E-05
13.083	827.60	5.52	101393.95	7.1E-05
13.650	3382.57	5.97	104776.52	7.6E-05
14.500	4587.30	5.40	109363.82	6.9E-05
14.683	1155.27	6.30	110519.09	8.1E-05
15.383	3793.40	5.42	114312.49	6.9E-05
16.417	5223.10	5.05	119535.59	6.5E-05
16.983	2836.14	5.00	122371.73	6.4E-05
17.833	4308.50	5.07	126680.23	6.5E-05
18.583	3602.50	4.80	130282.73	6.1E-05
19.283	4764.00	6.81	135046.73	8.7E-05
19.900	3216.90	5.22	138263.63	6.7E-05
20.500	2908.00	4.85	141171.63	6.2E-05
21.117	2834.50	4.60	144006.13	5.9E-05
21.700	2600.70	4.46	146606.83	5.7E-05
22.117	2157.29	5.18	148764.12	6.6E-05
22.817	3263.20	4.66	152027.32	6.0E-05
23.817	4575.22	4.58	156602.54	5.9E-05
24.594	2940.40	3.78	159542.94	4.8E-05
25.344	3382.39	4.51	162925.33	5.8E-05
25.961	2797.00	4.54	165722.33	5.8E-05
26.294	1958.80	5.88	167681.13	7.5E-05
27.161	4341.72	5.01	172022.85	6.4E-05
27.828	3083.40	4.63	175106.25	5.9E-05
28.361	2493.90	4.68	177600.15	6.0E-05
28.778	2222.40	5.33	179822.55	6.8E-05
29.328	2531.09	4.60	182353.64	5.9E-05
30.028	3403.60	4.86	185757.24	6.2E-05
30.744	3052.09	4.26	188809.33	5.4E-05
31.194	1831.00	4.07	190640.33	5.2E-05
32.011	2853.90	3.49	193494.23	4.5E-05
32.878	3471.60	4.01	196965.83	5.1E-05
33.294	1692.89	4.06	198658.72	5.2E-05
34.261	3390.60	3.51	202049.32	4.5E-05
36.144	4058.39	2.15	206107.71	2.8E-05
37.078	2869.40	3.07	208977.11	3.9E-05
37.694	2401.60	3.89	211378.71	5.0E-05
38.694	3370.19	3.37	214748.90	4.3E-05
39.794	3543.90	3.22	218292.80	4.1E-05
40.578	2379.49	3.04	220672.29	3.9E-05
41.161	2073.09	3.55	222745.38	4.5E-05

Temps cumulé (h)	Volume (ml)	Débit (l/h)	Volume cumulé (ml)	K (m/s)
42.161	3135.20	3.14	225880.58	4.0E-05
42.894	2295.49	3.13	228176.07	4.0E-05
43.694	2561.79	3.20	230737.86	4.1E-05
45.061	3512.50	2.57	234250.36	3.3E-05
45.478	1271.59	3.05	235521.95	3.9E-05
46.561	3154.70	2.91	238676.65	3.7E-05
47.744	3378.90	2.86	242055.55	3.7E-05
48.894	3221.10	2.80	245276.65	3.6E-05
50.194	3687.59	2.84	248964.24	3.6E-05
51.194	3469.59	3.47	252433.83	4.4E-05
52.361	3698.50	3.17	256132.33	4.1E-05
52.944	1767.77	3.03	257900.10	3.9E-05
54.444	4374.47	2.92	262274.57	3.7E-05
55.511	3071.19	2.88	265345.76	3.7E-05
56.811	3678.60	2.83	269024.36	3.6E-05
58.444	4542.69	2.78	273567.05	3.6E-05

<2mm

ECH 17

Temps cumulé (h)	Volume (ml)	Débit (ml/h)	Debit l/h	Volume cumulé (ml)	K (m/s)
0.014	82.90	248.70	0.2487	82.9	3.2E-06
0.036	110.20	206.63	0.21	193.1	2.6E-06
0.060	123.50	211.71	0.21	316.6	2.7E-06
0.077	91.70	229.25	0.23	408.3	2.9E-06
0.797	3197.47	185.18	0.19	3605.77	2.4E-06
0.981	837.70	189.67	0.19	4443.47	2.4E-06
1.055	337.20	189.08	0.19	4780.67	2.4E-06
1.108	239.40	189.00	0.19	5020.07	2.4E-06
1.828	2875.80	166.39	0.17	7895.87	2.1E-06
1.903	319.00	177.22	0.18	8214.87	2.3E-06
2.082	742.20	172.60	0.17	8957.07	2.2E-06
2.810	2736.70	156.53	0.16	11693.77	2.0E-06
3.130	1296.80	169.15	0.17	12990.57	2.2E-06
3.209	372.70	196.16	0.20	13363.27	2.5E-06
3.333	535.20	179.40	0.18	13898.47	2.3E-06
3.363	153.60	219.43	0.22	14052.07	2.8E-06
4.138	3132.10	168.39	0.17	17184.17	2.2E-06
4.419	1034.20	152.84	0.15	18218.37	2.0E-06
5.110	2428.00	146.56	0.15	20646.37	1.9E-06
6.099	3356.90	141.34	0.14	24003.27	1.8E-06
6.391	1188.80	169.83	0.17	25192.07	2.2E-06
7.135	2623.50	146.84	0.15	27815.57	1.9E-06
7.422	1113.90	161.83	0.16	28929.47	2.1E-06
10.103	8442.90	131.24	0.13	37372.37	1.7E-06
11.103	3093.00	128.88	0.13	40465.37	1.6E-06
12.235	3191.50	117.48	0.12	43656.87	1.5E-06
13.318	2665.10	102.50	0.10	46321.97	1.3E-06
13.547	664.50	120.82	0.12	46986.47	1.5E-06
14.415	2339.00	112.27	0.11	49325.47	1.4E-06
17.247	6405.06	94.26	0.09	55730.53	1.2E-06
18.485	2916.90	98.16	0.10	58647.43	1.3E-06
20.516	4302.10	88.25	0.09	62949.53	1.1E-06
24.311	6956.50	76.38	0.08	69906.03	9.6E-07
27.256	5287.9	74.83	0.07	75193.93	9.6E-07

<10mm
Terre + eau

ECH 18

Temps cumulé (h)	Volume (ml)	Débit l/h	Volume cumulé ml	K (m/s)
0.083	1328.23	15.94	1328.23	2.0E-04
0.333	5507.33	22.03	6835.56	2.8E-04
0.667	6878.00	20.63	13713.56	2.6E-04
1.167	5079.10	10.16	18792.66	1.3E-04
2.000	5032.64	6.04	23825.30	7.7E-05
2.633	3695.72	5.84	27521.02	7.5E-05
3.363	4767.24	6.36	32288.26	8.1E-05
4.383	5437.16	5.44	37725.42	7.0E-05
5.750	6289.00	4.60	44014.42	5.9E-05
6.950	5682.77	4.74	49697.19	6.1E-05
8.417	5586.97	3.81	55284.16	4.9E-05
10.383	3379.06	1.72	58663.22	2.2E-05
12.217	7955.23	4.34	66618.45	5.5E-05
13.117	2600.01	2.89	69218.46	3.7E-05
16.200	7727.40	2.51	76945.86	3.2E-05
17.383	2980.00	2.52	79925.86	3.2E-05
22.633	21456.40	4.09	101382.26	5.2E-05
24.000	2144.47	1.57	103526.73	2.0E-05
28.000	11598.30	2.90	115125.03	3.7E-05
31.800	10511.80	2.77	125636.83	3.5E-05
33.000	3704.82	3.09	129341.65	3.9E-05
34.883	4961.16	2.63	134302.81	3.4E-05
42.283	14468.30	1.96	148771.11	2.5E-05
47.050	9362.30	1.96	158133.41	2.5E-05
50.050	4567.44	1.52	162700.85	1.9E-05
52.167	3099.00	1.46	165799.85	1.9E-05
58.389	7935.21	1.28	173735.06	1.6E-05
62.389	6939.48	1.73	180674.54	2.2E-05
70.389	10044.60	1.26	190719.14	1.6E-05
78.939	10783.15	1.26	201502.29	1.6E-05
86.272	8272.09	1.13	209774.38	1.4E-05
93.606	7620.78	1.04	217395.16	1.3E-05
100.189	8500.12	1.29	225895.28	1.7E-05
124.772	17208.40	0.70	243103.68	9.0E-06
148.439	14802.00	0.63	257905.68	8.0E-06
171.872	12585.00	0.54	270490.68	6.9E-06
195.306	11258.59	0.48	281749.27	6.1E-06
236.222	19373.00	0.47	301122.27	6.1E-06
267.889	9969.00	0.31	311091.27	4.0E-06
308.806	17534.50	0.43	328625.77	5.5E-06
349.722	16595.30	0.41	345221.07	5.2E-06
390.722	16325.30	0.40	361546.37	5.1E-06
430.306	14862.20	0.38	376408.57	4.8E-06
453.972	8022.30	0.34	384430.87	4.3E-06
493.556	13555.30	0.34	397986.17	4.4E-06
534.556	15600.30	0.38	413586.47	4.9E-06
558.264	9224.00	0.39	422810.47	5.0E-06
581.697	9256.90	0.40	432067.37	5.1E-06
622.697	14230.00	0.35	446297.37	4.4E-06
663.197	13560.00	0.33	459857.37	4.3E-06
686.628	7923.10	0.34	467780.47	4.3E-06

<10mm
terre + Triton X-102

ECH 19

Temps cumulé (h)	Volume (ml)	Débit (l/h)	Volume cumulé (ml)	K (m/s)
1.917	58.01	0.03	58.01	4.4E-07
42.500	2425.39	0.06	2483.40	8.7E-07
47.000	640.15	0.14	3123.55	2.1E-06
49.000	374.22	0.19	3497.77	2.7E-06
66.617	5880.85	0.33	9378.62	4.8E-06
69.767	809.17	0.26	10187.79	3.7E-06
72.783	1066.85	0.35	11254.64	5.1E-06
73.917	470.05	0.41	11724.69	6.0E-06
140.100	34277.84	0.52	46002.53	7.5E-06
149.100	1742.88	0.19	47745.41	2.8E-06
169.433	6305.90	0.31	54051.31	4.5E-06
196.033	7508.05	0.28	61559.36	4.1E-06
214.433	4862.88	0.26	66422.24	3.8E-06
232.500	7172.46	0.40	73594.70	5.7E-06
239.900	2809.10	0.38	76403.80	5.5E-06
244.900	3106.15	0.62	79509.95	9.0E-06
266.217	8360.07	0.39	87870.02	5.7E-06
295.017	11202.50	0.39	99072.52	5.6E-06
319.567	9882.51	0.40	108955.03	5.8E-06
345.950	15394.33	0.58	124349.36	8.5E-06
375.233	13819.40	0.47	138168.76	6.8E-06
382.650	5115.40	0.69	143284.16	1.0E-05
407.233	10832.90	0.44	154117.06	6.4E-06
431.900	9498.10	0.39	163615.16	5.6E-06
455.417	8264.90	0.35	171880.06	5.1E-06
478.750	7722.88	0.33	179602.94	4.8E-06
519.650	21252.50	0.52	200855.44	7.5E-06
522.817	1235.20	0.39	202090.64	5.6E-06
563.706	12656.87	0.31	214747.51	4.5E-06
604.706	16648.30	0.41	231395.81	5.9E-06
645.594	10469.00	0.26	241864.81	3.7E-06
686.239	10702.00	0.26	252566.81	3.8E-06

<10mm
terre + Fenton

ECH 20

Temps cumulé (h)	Volume (ml)	Débit (ml/h)	Débit l/h	Volume cumulé (ml)	K (m/s)
2.000	76.26	38.13	0.03813	76.26	6.5E-07
42.500	2392.59	59.08	0.06	2468.85	1.0E-06
47.000	898.06	199.57	0.20	3366.91	3.4E-06
49.000	405.04	202.52	0.20	3771.95	3.4E-06
66.500	4759.22	271.96	0.27	8531.17	4.6E-06
68.767	677.30	298.81	0.30	9208.47	5.1E-06
71.783	847.82	281.05	0.28	10056.29	4.8E-06
72.950	349.10	299.23	0.30	10405.39	5.1E-06
139.167	27068.95	408.79	0.41	37474.34	6.9E-06
148.167	1560.60	173.40	0.17	39034.94	2.9E-06
168.583	6128.50	300.17	0.30	45163.44	5.1E-06
196.850	7760.20	274.54	0.27	52923.64	4.6E-06
214.250	4496.48	258.42	0.26	57420.12	4.4E-06
232.317	6485.60	358.98	0.36	63905.72	6.1E-06
239.717	2687.30	363.15	0.36	66593.02	6.1E-06
244.717	2681.33	536.27	0.54	69274.35	6.9E-06
264.083	8830.70	455.97	0.46	78105.05	5.8E-06
292.883	10675.70	370.68	0.37	88780.75	4.7E-06
317.383	8629.70	352.23	0.35	97410.45	4.5E-06
343.717	12479.35	473.90	0.47	109889.8	6.1E-06
373.133	10299.83	350.14	0.35	120189.63	4.5E-06
380.550	4463.30	601.79	0.60	124652.93	7.7E-06
405.133	9222.50	375.15	0.38	133875.43	4.8E-06
428.633	8205.80	349.18	0.35	142081.23	4.5E-06
452.233	6625.00	280.72	0.28	148706.23	3.6E-06
475.617	6487.89	277.46	0.28	155194.12	3.5E-06
516.567	16969.20	414.39	0.41	172163.32	5.3E-06
534.233	8853.50	501.14	0.50	181016.82	6.4E-06
575.233	13009.00	317.29	0.32	194025.82	4.1E-06
615.600	10256.40	254.08	0.25	204282.22	3.2E-06
649.031	9568.60	286.22	0.29	213850.82	3.7E-06
672.531	6642.00	282.64	0.28	220492.82	3.6E-06

**LISTE DES PRINCIPAUX COMPOSES DETECTES EN
CHROMATOGRAPHIE EN PHASE GAZEUSE
COUPLEE SPECTROMETRIE DE MASSE
(CPG-SM-Division Analyse GDF)**

Eléments présents dans le sol S3 autres que les 16 H.A.P.

**SEUILS DE DETECTION
POUR LES ANALYSES EFFECTUEES PAR LE
LABORATOIRE AGREE**

ANALYSES DES COMPOSES DE LA TERRE POLLUEE S3 Chromatographie en phase gazeuse couplée avec spectomètre de masse

HAP 2 cycles	HAP 3 cycles
Naphtalène	Acénaphène
Méthyl naphtalène	Phénalène
Ethényl naphtalène	Fluorène
Ethyl naphtalène	Méthyl fluorène
Diméthyl naphtalène	Phénanthrène
Méthyl naphtalène	Anthracène
Méthyl biphenyl	Diméthyl fluorène
Diméthyl biphenyl	Ethényl anthracène
Ethyl diméthyl azulène	Phényl naphtalène
Triméthyl propényl naphtalène	Méthyl anthracène
Tétraméthyl biphenyl	Méthyl phénanthrène
	Phényl naphtalène
	Diméthyl phénanthrène
	Ethyl anthracène

HAP 4 cycles	HAP 5 cycles
Fluoranthène	Cyclo penta pyrène
Pyrène	Benzo (ghi) fluoranthene
Méthyl pyrène	Méthyl benzo(a)anthracène
Benzo(a)fluorène	Benzo (b) fluoranthène
Diméthyl pyrène	Benzo (k) fluoranthène
Terphényl	Benzo (e)pyrène
Chrysène	Benzo (a) pyrène
Méthyl chrysène	Benzo (j)fluoranthène
Binaphtalène	Dibenzo (ah)anthracène
Diméthyl benzo phénathrène	Benzo(ghi)pérylène
Phényl anthracène	
Benzo (a) anthracène	

HAP 6 cycles
Indéno (1,2,3-cd)pyrène

Dérivés des HAP	Autres composés
Naphtalène carbonitrile	Méthyl phénol
Fluorénone	Diméthyl phénol
Anthracédione	Quinoline
Cyclo penta phénathrénone	Diméthyl quinoline
Benzo anthracénone	Dibenzo furane
Carbonitrile anthracène	Méthyl dibenzo furane
Naphtacénedione	Dibenzo thiophène
	Benzo quinoline
	Carbazole
	Benzo furane dihydro méthyl
	Soufre cristallin
	Benzo(b)naphtho furane
	Benzo naphtho thiophène
	Benzo(a)acridine

	Limite de quantification SOL mg/kg	Limites de quantification EAU µg/l
Naphtalène	0.25-0.2	0.1
Acénaphène	0.25	0.25
Acénaphthylène	2	0.25
Anthracène	0.1	0.05
Fluorène	0.1	0.25
Phénanthrène	0.1	0.2
Benzo (a) anthracène	0.1	0.1
Chrysène	0.1	0.05
Fluoranthène	0.1	0.25
Pyrène	0.5	0.1
Benzo (a) pyrène	0.1	0.05
Benzo (b) fluoranthène	0.1	0.05
Benzo (g,h,i) pérylène	0.5	0.10
Benzo (k) fluoranthène	0.1	0.05
Dibenzo (a,h) anthracène	0.1	0.1
Indéno (1,2,3cd) pyrène	0.25-0.2	0.1

Seuils de détection
du laboratoire prestataire C

RESUME

Les usines à gaz, qui fabriquaient le gaz à partir de la houille, ont fonctionné dans le monde entier depuis le début du XIX^{ème} Siècle. La dernière des 800 usines à gaz françaises a stoppée son activité en 1971. Des sous produits ou substances utilisées dans ces usines, comme les goudrons de houille, les phénols, les matières épurantes, peuvent se retrouver dans le sous sol du site.

L'objectif de cette étude vise à approfondir, pour le cas des sites d'anciennes usines à gaz, les méthodes de caractérisation des sols pollués par des résidus issus de la pyrolyse de la houille, en insistant sur les aspects liés à la répartition du polluant au sein du sol et aux mécanismes impliqués dans la migration possible des polluants (H.A.P) sous l'effet de circulation d'eau.

La partie expérimentale est basée sur trois axes principaux :

- la mise au point d'une méthodologie de caractérisation globale de la charge polluante d'un sol en goudrons issus de la pyrolyse de la houille, par des essais classiques de caractérisation (diffractométrie RX, tests granulométriques, observations à la binoculaire, tests de compactage normalisés, traitement thermique en four à différentes température, et pertes au feu...).
- l'étude des mécanismes de perméabilité à l'eau au travers d'essais de percolation réalisés sur des éprouvettes de sols contaminés ou non, en cellules de percolation forcée sous pression, et en colonnes par écoulement gravitaire.
- l'examen des transferts des polluants (16 HAP de la liste EPA) du sol vers l'eau par l'analyse des produits de percolation.

La répartition et la mise en évidence d'un phénomène d'agglomération du sol vis à vis du polluant a été démontré. L'agglomération et la charge polluante en goudron sont fortement impliquées dans la modification des propriétés du sol vis à vis des circulations d'eau, et ce, sous différentes conditions d'essais. Un auto-colmatage des pores semble provoquer une forte diminution des perméabilités, d'où une limitation du transfert de pollution au cours du temps. Les résultats d'analyses montrent que la teneur en polluants des eaux de percolation a elle aussi tendance à se réduire selon un processus analogue.

Mots clés : Goudrons de houille, caractérisation, perméabilité, usines à gaz, hydrocarbures aromatiques polycycliques (H.A.P).

ABSTRACT

About 800 manufactured gas plants were in operation in France between the beginning of the 19th century and 1971, when the last one closed. Since 1990, considerable efforts have been made to investigate these sites and control the effects of any by-products (coal-tar, spents oxides, etc.) still remaining in the subsoil.

Several laboratory experiments have been launched. The results are now available and can be examined through laboratory tests and observations (RX, soil testing, thermal treatment, compaction tests, etc.). These results provide information useful

in understanding how coal tar occurs in the soil and the nature of the interaction between soils and pollution. On the basis of laboratory results, some points will be discussed in greater depth, in particular :

- Evaluation of the heterogeneity of the pollution and the agglomeration phenomenon in the soil in its initial state.
- The influence of soil characteristics - water and moisture content, texture - on permeability, using the constant head permeability cell test.

The permeability results observed ranged from 10^{-4} m/s to 10^{-3} m/s in the case of contaminated soils, and revealed a self-consolidation phenomenon during testing. All of these experiments showed that coal tar contamination is a complex phenomenon, in which many factors interact on the permeability and drainage characteristics, determining mass transfers of pollutants (PAHs) between the contaminated soil and the surrounding environment.

The concentrations of pollutants (PAHs) after permeability testing were characterized, showing that there were less transfers in the aqueous phase. Risk assessment shows that the impact of PAHs depends more on the mobility of pollutants than their concentrations.

Key words : Coal-tar, characterization, hydraulic conductivity, manufactured gas plant sites, pol aromatic hydrocarbons (PAHs).